

**EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.**

**EP 0 410 166 A1**

**FULL SPECIFICATION – ENGLISH**

European Patent Office

(11) Publication No.: 0 410 166 A1

## EUROPEAN PATENT APPLICATION

(21) Application No.: 90112733.2

(51) Int. Class 5: H01M 8/02

(22) Date of application: 4.7.90

(3) Priority: 24.7.89 CH 2769/89

(43) Date of publication of the application: 30.1.91 Patent Journal 91/05

(84) Contracting states: CH DE FR GB IT LI NL SE

(71) Applicant: ASEA BROWN BOVERI AG  
Haselstrasse  
CH-5401 Baden (CH)

(72) Inventor: Dr. Mahamed Nazmy  
Zelglistrasse 30  
30-5442 Fislisbach (CH)

---

### **(54) Component for conducting current, for high temperature fuel cells**

A component for conducting current between adjoining flat, smooth high temperature fuel cells arranged in stacks with ceramic solid electrolyte from a core (1) determining the geometric form, of a heat-resistant nickel-base or iron-base alloy or of Cr, Mo, W or Fe or a heat-resistant, doped Ni<sub>3</sub>Si and a metallic shell (3) as a protective layer, not oxidisable by O<sub>2</sub> at operating temperature, of Au, Pd or Pt or an alloy of these elements, and an intermediate layer (2) of Ni<sub>3</sub>Si as a diffusion barrier between the core (1) and the shell (3).

## COMPONENT FOR CONDUCTING CURRENT, FOR HIGH TEMPERATURE FUEL CELLS

### Technical area

High-temperature fuel cells for converting chemical energy into electrical energy. Electro-chemical conversion of energy and the devices required to achieve this are gaining importance in comparison with other conversion methods thanks to their efficiency.

The invention concerns further development of electro-chemical high temperature cells using ceramic solid electrolytes as ion conductors where the cells are to be largely independent of the fuel used and are to offer a space-saving arrangement.

In a narrower sense, the invention concerns a component for conducting current between adjoining flat, smooth, high temperature fuel cells arranged in stacks, with solid electrolyte on the basis of doped, stabilised zircon dioxide, the oxygen electrode of one of the fuel cells being electrically connected to the fuel electrode of the next fuel cell and the clearance between the electrodes being subdivided by a gas-tight, electrically conducting separating plate into two spaces carrying the different gaseous media fuel and oxygen carrier.

### State of the art

High-temperature fuel cells with solid electrolyte are known from numerous publications. The actual elements for such cells can have various shapes and dimensions. In order to keep the ohmic potential losses low, it has been tried in every way to keep the electrolyte layer as thin as possible. The shape and dimensions of the elements also depend on the requirement in respect of the possibility of electrically connecting a large number of cells in series to obtain the required terminal voltage and to keep the currents comparatively low. There are elements in the shape of:

Cylindrical valves (Westinghouse),  
 Conical valves similar to a "box blade" (Dornier)  
 Trapezoidal waves (Argonne)  
 Circular plates (ZTEK).

The development of fuel cells with ceramic solid electrolyte has so far aimed almost exclusively at improving and reducing the cost of ceramic components in the shape of tubular fuel cell elements. There is practically no information on appropriate arrangements aiming at optimum utilization of space and achieving high potential by providing an advantageous configuration suitable for connecting the individual cells in series.

In the case of a stack-like arrangement of a large number of plate-shaped, similar flat fuel cells like the filter press principle, the current must be carried vertically to the plane of the plate from the oxygen electrode of one cell to the fuel electrode of the next cell. The essential components required for this function are separating plates (bipolar plates) and electrical connecting links to the electrodes (current collectors).

The components known so far fail to satisfy modern requirements in respect of the materials used, the design and manufacture and the long-time behaviour.

Most of the well-known basic elements used for fuel cells are characterised by comparatively complicated geometry which makes the construction of compact, space-saving installations difficult. Besides, economic production on a large scale in the shapes proposed so far is hardly possible. In particular, a configuration for an optimum series circuit which would be usable and implementable with simple manufacturing facilities does not exist.

Therefore, there is great need for further development, simplification and rationalisation of construction and production of basic elements and their optimum arrangement in relation to each other on ceramic high-temperature fuel cells.

The following publications are referred to as regards the state of the art:

- O. Antonsen, W. Baukal and W. Fischer, "High-Temperature Fuel Battery with Ceramic Electrolytes", Brown Boveri Bulletins, January/February 1966, Pages 21 – 30,
- US-A- 4 692 274
- US-A- 4 395 468
- W.J. Dollard and W.G. Parker, "An overview of the Westinghouse Electric Corporation solid oxide fuel cell program" Extended Abstracts, Fuel Cell Technology and Applications, International Seminar, The Hague, The Netherlands, 26 to 29 October 1987.
- F.J. Rohr, High-Temperature Fuel Cells, Solid Electrolytes, 1987, by Academic Press, Inc., Page 431 and onwards.
- D.C. Fee et al., Monolithic Fuel Cell Development, Argonne National Laboratory, Paper presented at the 1986 Fuel Cell Seminar, Oct. 26 – 29, 1986, Tucson, AZ, U.S. Department of Energy, The University of Chicago.
- Shouichi Ochiai and Tomoo Suzuki, "Solubility Data in Ni<sub>3</sub>Si with Ternary Additions" BULL. P.M.E. (T.I.T), No. 52, September 1983, Published by Research Laboratory of Precision Machinery and Electronics, Tokyo Institute of Technology, Nagatsuta, Midori-ku, Yokohama 227, Japan.
- TOMOO SUZUKI, YOSHIHIRO OYA, and SHOUICHI OCHIAI, "THE MECHANICAL BEHAVIOUR of Nonstoichiometric Compounds Ni<sub>3</sub>Si, Ni<sub>3</sub>Ge and Fe<sub>3</sub>Ga" METALLURGICAL TRANSACTIONS A, VOLUME 15A, JANUARY 1984- 173.
- A.I. Taub, C.L. Briant, S.C. Huang, K.-M Chang and M.R. Jackson, "DUCTILITY IN BORON-DOPED NICKEL-BASE L12 ALLOYS PROCESSED BY RAPID SOLIDIFICATION", General Electric Corporate Research and Development Schenectady, New York 12301, Scripta METALLURGICA Vol. 20, pages 129 to 134, 1986.

## Description of the invention

The purpose of the invention is to offer a component for conducting current between two adjoining, flat, high-temperature fuel cells arranged in a stack, which ensures on the one hand good electrical contact to the electrodes of the fuel cell as well as between the components themselves at temperatures up to 1000°C, on its part having high metallic electrical conductivity and being capable of being used in a reducing, neutral as well as oxidizing atmosphere without disadvantageous changes due to material migration such as diffusion or other migration processes or material losses such as evaporation etc., and has long-time stability. It must be possible to produce the component in a cost-effective way; it must be reproducible and interchangeable.

This task is solved by the fact that the component mentioned at the beginning consists of a core determining its geometric shape, of a heat-resistant material of a preferred iron or a nickel-base alloy, or Fe, Cr, Mo, W or an alloy of these elements which contains no more than 0.2 percent by weight of Al, Ti, Nb, Co and no more than 0.5 percent by weight of Si, or the intermetallic compound Ni<sub>3</sub>Si, and a metallic shell as a protective layer not oxidizing in an atmosphere of oxygen, of the preferred elements Au, Pd, Pt or another alloy of at least two of these elements, and an intermediate layer of Ni<sub>3</sub>Si serving as a diffusion barrier between the core and the shell.

## Implementing the invention:

The invention is described here with reference to the examples shown in the drawings.

The following is illustrated:

Figure 1 – a longitudinal section through a current collector in the shape of a contact finger with a continuous shell,

Figure 2 – a longitudinal section through a current collector in the shape of a contact finger with a non-continuous shell and a continuous diffusion barrier,

Figure 3 – a longitudinal section through a current collector in the shape of a contact finger with a non-continuous shell and a non-continuous diffusion barrier,

Figure 4 – a longitudinal section through a current collector in the shape of a corrugated wire,

Figure 5 – a longitudinal section through a separating plate,

Figure 6 – a longitudinal section through a bipolar plate,

Figure 7 – a longitudinal section through a current collector in the shape of a contact finger, the core of which consists of the material of the diffusion barrier,

Figure 8 – a longitudinal section through a current collector in the shape of a corrugated strip, the core of which consists of the material of the diffusion barrier,

Figure 9 – a longitudinal section through a separating plate, the core of which consists of the material of the diffusion barrier,

Figure 10 – a longitudinal section through a bipolar plate, the core of which consists of the material of the diffusion plate.

Figure 1 shows a longitudinal section through a current collector in the shape of a contact finger with a continuous shell. 1 is generally the core of the component. It is made of Cr, Mo, W, Fe or a nickel or iron-base alloy free of Al and Si with or without oxide dispersion. 2 is an intermediate layer of the component which acts as a diffusion barrier for precious metals. It consists of the intermetallic compound  $\text{Ni}_3\text{Si}$ , which possibly contains further additives to increase heat resistance and/or ductility. 3 is the shell of the component acting as a protective layer. It is generally made of a preferred precious metal such as Au or a platinum metal or an alloy of these elements.

The shell is preferably made of Au, Pd or an Au/Pd alloy. In this instance, 6 is a component designed as a current collector in the shape of a contact finger. 7 is the head of the contact finger.

Figure 2 shows a longitudinal section through a current collector in the shape of a contact finger with a non-continuous shell and a continuous diffusion barrier. 1 is the core of the component of a heat-resistant metallic material as in Figure 1. The intermediate layer 1 is continuous while the shell 3 sits on the head 7 of the component merely as a protective layer in the shape of a cap. On the part of the contact finger 6 which is not protected by the shell 3 there is the protective oxide layer 4 which forms the protective layer of the elements of the intermediate layer 2, at the very latest in operation at higher temperatures. The protective oxide layer consists in this case mainly of  $\text{SiO}_2$ .

Figure 3 refers to a longitudinal section through a current collector in the shape of a contact finger with a non-continuous shell and non-continuous diffusion barrier. 1 corresponds to the core as in Figure 1. The intermediate layer (diffusion barrier) 2 as well as the shell (protective layer) 3 covers only the head 7 of the contact finger 6. On the part of the contact finger 6 which is neither protected by the shell 3 nor the intermediate layer 2 there is the protective oxide layer 5 formed of the material of the core 1. It consists mainly of  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ .

Figure 4 shows a longitudinal section through a current collector in the shape of a corrugated wire. The current collector 8 consists of a flexible wire shaped into sine-like waves. 1 is the core of the component which consists of a metallic high-temperature resistant material. 2 is the intermediate layer of  $\text{Ni}_3\text{Si}$  and 3 the shell of precious metal.

Figure 5 is a longitudinal section through a separating plate. The core of the component is provided on one side with the intermediate layer (diffusion barrier) and the shell 3 acting as the protective layer. The other side of the separating plate is uncoated in this case. Such separating plates 9 are used as separators between current collectors with non-similar polarity for separating and guiding different gaseous media (oxygen carrier and gaseous fuel).

Figure 6 shows a longitudinal section through a bipolar plate. The bipolar plate 10 consists of a core 1 in the form of a profile plate with rises 11 in the shape of knobs and the layers 2 and 3 applied to one side. The knobs 11 are arranged on both sides, staggered in relation to each other. The intermediate layer 2 acting as the diffusion barrier is made



of Ni<sub>3</sub>Si. Precious metal is envisaged for the non-oxidizing shell 3 in the form of a protective layer.

Figure 7 refers to a longitudinal section through a current collector in the shape of a contact finger, the core of which is of the same material as the diffusion barrier. In this particular case, the core 1 of the component is a compact body of Ni<sub>3</sub>Si which decides the shape. The shell 3 which is of precious metal sits direct on the core 1. The other reference numbers are the same as in Figure 1.

Figure 8 shows a longitudinal section through a current collector in the shape of a corrugated strip, the core of which is of the same material as the diffusion barrier. The current collector 12 is in this particular case a corrugated strip with rectangular corrugations. The precious metal shell 3 sits direct on both sides of the core 1 of Ni<sub>3</sub>Si.

Figure 9 shows a longitudinal section through a separating plate, the core of which is of the same material as the diffusion barrier. The design of the flat separating plate 9 is basically similar to that shown in Figure 5. However, the core 1 is made of compact Ni<sub>3</sub>Si; the precious metal shell 3 is placed direct on one side of it.

Figure 10 refers to a longitudinal section through a bipolar plate, the core of which consists of the same material as the diffusion barrier. The bipolar plate 10 has rises 13 on both sides in the form of nipples or ridges as contacts for electrodes and for conducting current. The core 1 of the component is of compact Ni<sub>3</sub>Si. The precious metal shell 13 is placed direct on it on one side.

#### Example 1:

See Figure 1.

The component was available in the form of a current collector with numerous contact fingers 6 made a piece of plate. The plate used for this purpose was 0.6 mm thick and was made of Inconel 600, a nickel-base super alloy with the following composition:

Cr = 15.5 percent by weight

Fe = 8.0 percent by weight

Mn = 0.5 percent by weight

Si = 0.2 percent by weight

C = 0.08 percent by weight

Ni = the remainder

The plate, moulded in the shape of contact fingers 6, was coated with a 10  $\mu\text{m}$  thick intermediate coating 2 (diffusion barrier) of the intermetallic compound  $\text{Ni}_3\text{Si}$  by cathodic sputtering. The shell 3 (protective layer) was deposited electro-chemically on the intermediate layer 2 in the form of a galvanic coating of gold to an average thickness of 25  $\mu\text{m}$ . This process was intended to produce the shell 3 with a maximum thickness of approx. 40  $\mu\text{m}$  within the area of the head 7 of the contact finger 6.

#### Example 2:

See Figure 2

A component in the form of a current collector consisting of numerous contact fingers 6 was made from a piece of plate as in Example 1. The plate was 0.4 mm thick and was of an iron-base alloy, Material No. 1.4845, designated X12CrNi25 21 as per German DIN Standard, with the following composition:

Cr = 25 percent by weight

Ni = 20 percent by weight

Si = 0.45 percent by weight

Mn = 0.7 percent by weight

C = 0.1 percent by weight

Fe = the remainder

An intermediate 10  $\mu\text{m}$  thick coat of  $\text{Ni}_3\text{Si}$  doped with 0.1% B was applied by cathodic sputtering to all sides of the plate body moulded as in Example 1.

A number of layers of palladium approx. 3  $\mu\text{m}$  and of layers of gold approx. 7  $\mu\text{m}$  thick were alternately deposited by galvanic means on the intermediate layer 2 only in the area of the head 7 of the contact finger 6 in such a way that the shell 3, which was on the average approx. 30  $\mu\text{m}$  thick, had a composition of 80 percent by weight of Au/20 percent by weight of Pd. After the usual cleaning and drying, the current collector was vacuum annealed for  $\frac{1}{2}$  hour at 900°C. A mix-crystal having the above composition with a solidus point of approx. 1340°C was formed by diffusion, that is a temperature which was almost 300°C higher than the melting point of pure gold. In this way, it was possible to increase strength and hardness considerably at the operating temperature of 900°C, compared with the figures for pure gold, and to lower the vapour pressure. In operation, a protective oxide layer 4 consisting mainly of  $\text{SiO}_2$  originating from the material of the intermediate layer 2 was formed on the areas of the contact finger 6 not protected by the shell 3.

### Example 3:

See Figure 3

A component in the shape of a current collector consisting of 4 parallel contact fingers 6 was produced from a rolled strip in a similar way to Example 1 but by hot pressing. The strip was 0.5 mm thick and was made of an oxide dispersion hardened Ni/Cr alloy commercially known as TD NiCr with the following composition:

Cr = 20 percent by weight

$\text{ThO}_2$  = 2.0 percent by weight

Ni = the remainder

A 5  $\mu\text{m}$  intermediate layer 2 (diffusion barrier) of the intermetallic compound  $\text{Ni}_3\text{Si}$  was applied by the cathodic sputtering method only to the head 7 of the contact finger 6 of the component. 4 layers of palladium and gold each approx. 5  $\mu\text{m}$  thick, were galvanically applied alternately on the intermediate layer 2 in the area of the head 7 of the contact finger 6 so that the shell, which was on the average approx. 40  $\mu\text{m}$  thick, had a

composition of 60 percent by weight of Au/40 percent by weight of Pd. Subsequently, the workpiece was annealed in an argon atmosphere for ¼ hour at 1000°C. The mix-crystal having the above composition formed by diffusion had a solidus temperature of approx. 1440°C.

This alloy was characterised by a much higher strength and hardness than pure gold and pure palladium. A tensile strength of 350 Mpa and a Vickers hardness of 160 VH were measured in a soft annealing condition at room temperature. In operation, a protective oxide layer 5 originating from the material of the core 1 and consisting mainly of Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> formed on the areas of the contact finger 6 which were not covered by the shell 3 and the intermediate layer 2.

#### Example 4:

See Figure 4

The component was available in the form of a current collector 8 consisting of a corrugated wire. The wire was 0.35 mm thick and was made of oxide dispersion hardened molybdenum with the following composition:

La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> = 2 percent by weight

Mo = the remainder

A 3 µm thick intermediate layer 2 consisting of Ni<sub>3</sub>Si doped with 0.2% B was applied by cathodic sputtering to the corrugated wire on all sides. The shell 3 (protective layer) in the form of a galvanic coating of palladium was deposited electrochemically to an average thickness of 20 µm over the intermediate layer 2. Molybdenum has excellent resistance to heat even at 1000°C and hardly loses any of its resilience properties. Resistance to heat increases further due to slip-band blockage caused by oxide dispersion.

#### Example 5:

See Figure 4

The current collector 8 in the form of a corrugated wire was 0.3 mm in diameter and was made of tungsten with the following composition:

ThO<sub>2</sub> = 2 percent by weight

W = the remainder

The procedure was the same as in England 4. The corrugated wire was provided with a 5 µm thick intermediate layer 2 of Ni<sub>3</sub>Si doped with B, which in turn was coated with the shell 3 of a galvanically deposited platinum 30 µm thick. Platinum is highly suitable for continuous long-time operation at temperatures above approx. 600°C thanks to its comparatively high melting temperature and its low vapour pressure which at 1000°C is 6 tenths of a percent lower than that of gold.

#### Example 6:

See Figure 5

The component in the form of a separating plate 9 made from plate. The plate was 0.8 mm thick and was made of a nickel-base super alloy called Inconel 690 with the following composition:

Cr = 30 percent by weight

Fe = 9.5 percent by weight

C = 0.03 percent by weight

Ni = the remainder

The core 1 of the component was provided with an intermediate layer 2 (diffusion barrier) 100 µm thick of Ni<sub>3</sub>Si by the vacuum plasma spray method. A shell 3 in the form of an 80 µm thick gold plate was hot rolled over this intermediate layer 2 in a reducing atmosphere. Any pores which may have been left after plasma spraying were fully closed in this way.

#### Example 7:

See Figure 6

The component consisted of a bipolar plate 10 with rises 11 in the form of knobs on both sides. The material of the core 1 was an iron/nickel alloy called Incoloy 802. This material in the form of a wrought alloy had the following composition:

Cr = 21.4 percent by weight

Fe = 45 percent by weight

Ni = 32 percent by weight

Mn = 0.8 percent by weight

Si = 0.4 percent by weight

C = 0.4 percent by weight

A soft-annealed plate 0.7 mm thick made from this material was hot-pressed to produce these knobs. An intermediate layer 2 was then applied on one side as follows: The material of the core 1 was first coated on one side with a nickel layer with an average thickness of approx. 70  $\mu\text{m}$  by the electrochemical deposition method. A fine-grain silicon powder (maximum grain size 50  $\mu\text{m}$ ) was then deposited on this nickel layer in the right stoichiometric proportion to produce the intermetallic compound  $\text{Ni}_3\text{Si}$  and the whole subjected to annealing in a vacuum for  $\frac{1}{2}$  hour at 1100°C. At this stage, the silicon diffused into the nickel layer and combined into  $\text{Ni}_3\text{Si}$  (intermediate layer 2). The intermediate layer 2 with an average thickness of approx. 100  $\mu\text{m}$  thus formed was then coated with a shell 3 of galvanically deposited 40  $\mu\text{m}$  thick palladium galvanically deposited over it.

#### Example 8:

See Figure 6

The component was made of a bipolar plate 10 with rises 11, as in Example 7. The material used for the core 1 was a heat-resistant Cr/Fe/Mo cast alloy with the following composition:

Cr = 60 percent by weight

Fe = 15 percent by weight

Mo =25 percent by weight

The bipolar plate 10 was precision cast. The average thickness of the plate was 1 mm. The intermediate layer 2 of Ni<sub>3</sub>Si was applied to a thickness of 200  $\mu$ m by the vacuum plasma spray method. The shell 3 consisted of an alloy of 60 percent by weight of Pd and 40 percent by weight of Pt and was approx. 30  $\mu$ m thick. It was deposited by an electrochemical process.

#### Example 9:

See Figure 7:

The component was in the form of a current collector with 6 parallel contact fingers 6. It was produced by hot pressing from a plate of the intermetallic compound Ni<sub>3</sub>Si doped with boron and chromium

After a preliminary treatment in a bright-annealing furnace, the whole contact finger 6 was galvanically coated with a layer of gold (3) 50  $\mu$ m thick.

#### Example 10:

See Figure 8

The component was a current collector 12 in the form of a corrugated strip. The core 1 of the strip consisted of a ductile intermetallic compound Ni<sub>3</sub>Si doped with 0.3% boron, solidified by rapid cooling by the meltspinning method. The strip was 0.3 mm thick and its rectangular corrugations were formed by hot pressing in a fixture.

After annealing in a reducing atmosphere, the strip 12 was galvanically coated with a 30  $\mu$ m thick layer of palladium (3).

#### Example 12

See Figure 10

The component consisted of a bipolar plate 10 with rises 13 in the form of nipples. The core 1 was made of Ni<sub>3</sub>Si. The bipolar plate 10 approx. 1.2 mm thick in its flat part and provided with rises 13 approx. 1.4 mm high was precision cast.

One side of the bipolar plate 10 was provided with a shell 3 as a protective layer 40 µm thick consisting of an alloy of 70 percent by weight of Au/30 percent by weight of Pd. At the same time, layers of palladium and gold max. 5 µm thick were galvanically deposited alternately in the correct stoichiometric ratio and the whole subsequently annealed in a vacuum for ½ hour at 950°C to balance the diffusion.

#### Example 13:

See Figure 7

The component represented a current collector 6 in the form of a contact finger. The core 1 of the component was made of an oxide dispersion hardened intermetallic compound with the composition Ni<sub>3</sub>Si.

To start with, stoichiometric quantities of nickel and silicon were melted in a crucible in a vacuum and poured. The solidified parts were crushed in successive operations into a fine-grain powder with particles under 30 µm in diameter which was subsequently mixed with 2 percent by weight of thorium oxide ThO<sub>2</sub>. This mixture was then mechanically alloyed in an attritor under toluol for 20 hours. The alloyed powder was placed in a special mould and compacted at 1000°C by hot pressing to at least 98% of the theoretical density.

After bright annealing in a reducing atmosphere, the contact finger 6 was pickled and galvanically coated with a 40 µm thick shell (3) of palladium.

#### Example 14:

See Figure 10



The component was a bipolar plate 10 with rises 13 in the form of ridges. The core 1 of the component was made of an oxide dispersion hardened intermetallic compound with composition  $\text{Ni}_3\text{Si}$  doped with 0.5 percent by weight of boron.

The procedure was exactly the same as in Example 13. The  $\text{Ni}_3\text{Si}$  powder with 25  $\mu\text{m}$  particles (max.) doped with boron was mixed with 1.5 percent by weight of yttrium oxide  $\text{Y}_2\text{O}_3$  and mechanically alloyed under toluol in an attritor for 24 hours. The bipolar plate 10 was made by hot pressing the alloy powder at a temperature of  $950^\circ\text{C}$ . A density of 99% of the theoretical figure was reached here. After the usual cleaning, the bipolar plate 10 was coated with a shell 13 of 30  $\mu\text{m}$  platinum in an electrochemical process.

#### Example 15:

See Figure 7

The component was a current collector 6 in the form of a contact finger with a thick head 7. The core 1 of the component was built up of two zones, the inner, actual core zone consisting of an intermetallic compound  $\text{Ni}_3\text{Si}$  oxide dispersion hardened with 2 percent by weight of thorium oxide  $\text{ThO}_2$ . On the other hand, the outer boundary zone consisted of non-oxide dispersion hardened  $\text{Ni}_3\text{Si}$  which was doped with 0.5 percent by weight boron for the purpose of increasing the ductility of this zone.

Stoichiometric amounts of nickel and silicon were melted and processed into a powder with a maximum particle size of 30  $\mu\text{m}$ , mixed with 2 percent by weight of  $\text{ThO}_2$  and alloyed in an attritor as in Example 13. The required shape was produced by hot isostatic pressing for  $\frac{1}{2}$  hour at  $1000^\circ\text{C}$ . The contact finger 6 was cleaned and then coated by vacuum plasma spraying with  $\text{Ni}_3\text{Si}$  doped with 0.5 percent by weight of boron. The average coat thickness at the shaft of the contact finger was 250  $\mu\text{m}$  and at the head 7 (in particular at its apex) approx. 400  $\mu\text{m}$ .

After cleaning, the head 7 was galvanically coated with a 50  $\mu\text{m}$  thick shell (3) of platinum. This current collector combined the high strength of the core zone with good ductility of the boundary zone (surface layer).

The invention is not limited to the examples.

The component for conducting current between adjoining flat, smooth, high-temperature fuel cells, arranged in stacks, with solid electrolyte on the basis of doped, stabilized zircon oxide, each oxygen electrode of one fuel cell being electrically connected to the fuel cell of the next fuel cell and the space between the electrodes being partitioned by a gas-tight, electrically conductive separating plate into two spaces carrying different gaseous media fuel and oxygen carrier, consists of core 1, determining the geometric shape, of a heat-resistant material which could be either an iron-base or a nickel-base alloy, Fe, Cr, Mo, W or an alloy of these elements containing no more than 0.2 percent by weight of Al, Ti, Nb, Co and no more than 0.5 percent by weight of Si or the intermetallic compound nickel silicide  $\text{Ni}_3\text{Si}$ , and a metallic shell 3 as a protective layer, not oxidizing in an oxygen atmosphere at operating temperature, selected from the elements Au, Pd, Pt or any preferred alloy of at least two of these elements, and an intermediate layer 2 of  $\text{Ni}_3\text{Si}$  serving as a diffusion barrier between the core 1 and the shell 3. The component is designed in the shape of a contact finger 6, a comb, a wire 8, a strip 12, a mesh, a separating plate 9 or a bipolar plate.

In one example, the material of the core 1 is made of  $\text{Ni}_3\text{Si}$  doped with other elements substituting Si, having high creep resistance and resilient properties at operating temperatures up to  $1000^\circ\text{C}$ , which is used in operation solely to absorb mechanical loads directly.

In another example, the material of the core 1 is a nickel-base alloy containing a maximum of 78 percent by weight of nickel, an intermediate layer with a maximum thickness of  $100\text{ }\mu\text{m}$ , not mechanically stressed, being envisaged between the core and the shell.

In a preferred example, the material of the core 1 is an oxide dispersion hardened Ni/Cr alloy containing a maximum of 78 percent by weight of Ni and at least 20 percent by weight of Cr and a maximum of a total of 2 percent by weight of dispersoids selected from one of the oxides  $\text{ThO}_2$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  or  $\text{La}_2\text{O}_3$  or one of the oxide dispersion hardened W

or  $\text{Mo}$  or  $\text{W/Mo}$  alloy with a maximum total of 5 percent by weight of dispersoids selected from at least one of the oxides  $\text{ThO}_2$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ ,  $\text{La}_2\text{O}_3$ , one oxide of the rare earths  $\text{CaO}$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{BaO}$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Li}_2\text{O}$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{V}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ,  $\text{UO}_2$  or  $\text{HfO}_2$ .

In another version, the material of the core 1 of a chromium alloy with 60 percent by weight of  $\text{Cr}$ , 15 to 25 percent by weight of  $\text{Fe}$  and 15 to 25 percent by weight of  $\text{Mo}$ .

In a special version, the material of the core 1 consists of oxide dispersion hardened  $\text{Ni}_3\text{Si}$  with 2 percent by weight of  $\text{ThO}_2$  or  $\text{Y}_2\text{O}_3$  or  $\text{La}_2\text{O}_3$ , doped with 0.5 percent by weight of boron. The material of the core 1 is preferably built up of two zone, the inner core zone consisting of  $\text{Ni}_3\text{Si}$  oxide dispersion hardened with 2 percent by weight of  $\text{ThO}_2$  or  $\text{Y}_2\text{O}_3$  and the outer boundary zone of non oxide dispersion hardened  $\text{Ni}_3\text{Si}$  doped with 0.5 percent by weight of boron.

## Claims

1. A component for conducting current between adjoining flat, smooth, stacked high-temperature fuel cells with solid electrolyte on a base of doped, stabilised zircon oxide, each oxygen electrode of one fuel cell being electrically connected to the fuel electrode of the next fuel cell and the space between the electrodes being partitioned by a gas-tight, electrically conducting separating plate (9) into two spaces carrying the different gaseous media fuel and oxygen carrier, characterised by the fact that it consists of a core (1), determining the geometric shape, of a material selected from one of the iron-base or nickel-base alloys or Fe, Cr, Mo, W or an alloy of these elements which contains a maximum of 0.2 percent by weight of Al, Ti, Nb, Co and a maximum of 0.5 percent by weight of Si, or the intermetallic compound nickel silicide  $\text{Ni}_3\text{Si}$ , and a metallic shell (3) as a protective coating not oxidizing in the oxygen atmosphere at operating temperature, selected from the elements Au, Pd, Pt or any preferred alloy of at least two of these elements and an intermediate layer (2) of  $\text{Ni}_3\text{Si}$  serving as a diffusion barrier between the core (1) and the shell (3).
2. A component according to Claim 1, characterised by the fact that it is designed as a current collector in the shape of a contact finger (6) or a comb or a wire (8) or a strip (12) or a mesh.
3. A component according to Claim 1, characterised by the fact that it is designed as a separating plate (9) or a bipolar plate (10).
4. A component according to Claim 1, characterized by the fact that the material of the core (1) consists of  $\text{Ni}_3\text{Si}$  doped with elements which are partly substituting Si and displaying high creep resistance and resilient properties up to  $1000^\circ$ , which is solely used to absorb directly mechanical stresses in operation.

5. A component according to Claim 1, characterised by the fact that the material of the core (1) consists of a nickel-base alloy with a maximum of 78 percent by weight of nickel and that an intermediate layer (2) with a maximum thickness of 100  $\mu\text{m}$ , which is not mechanically stressed, is envisaged between the core and the shell.
6. A component according to Claim 5, characterised by the fact that the material of the core (1) consists of an oxide dispersion hardened Ni/Cr alloy containing a maximum of 78 percent by weight of Ni and a minimum of 20 percent by weight of Cr with a maximum total of 2 percent by weight of dispersoids selected from at least one of the oxides  $\text{ThO}_2$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  or  $\text{La}_2\text{O}_3$ .
7. A component according to Claim 1, characterised by the fact that the material of the core (1) consists of an oxide dispersion hardened W or Mo or W/Mo alloy containing a maximum total of dispersoids selected from at least one of the oxides  $\text{ThO}_2$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ ,  $\text{La}_2\text{O}_3$ , an oxide of the rare earths  $\text{CaO}$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{BaO}$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Li}_2\text{O}$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{V}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ,  $\text{UO}_2$  or  $\text{HfO}_2$ .
8. A component according to Claim 1, characterised by the fact that the material of the core (2) consists of a chromium alloy containing 60 percent by weight of Cr, 15 to 25 percent by weight of Fe and 15 to 25 percent of Mo.
9. A component according to Claim 1, characterised by the fact that the material of the core (1) consists of oxide dispersion hardened  $\text{Ni}_3\text{Si}$  doped with 0.5 percent by weight of boron, with up to 2 percent by weight of  $\text{ThO}_2$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  or  $\text{La}_2\text{O}_3$ .
10. A component according to Claim 1, characterised by the fact that the material of the core (1) is built up of two zones, the internal core zone consisting of 2 percent by weight of  $\text{ThO}_2$  or  $\text{Y}_2\text{O}_3$  oxide dispersion hardened  $\text{Ni}_3\text{Si}$  and the outer boundary zone of non oxide dispersion hardened  $\text{Ni}_3\text{Si}$  doped with 0.5 percent by weight of boron.

European Patent Office

## EUROPEAN RESEARCH REPORT

Application Number

EP 90 11 2733

### RELEVANT DOCUMENTS

Category	Document designation	Classification of the Application (Int. Class 5)
A	WO-A-8 606 762 (M. HSU)	H 01 M 8/02
	----	
A	US-A-3 516 865 (C.S. TEDMON)	
A	PATENT ABSTRACT OF JAPAN, Volume 13, No. 343 (E-796) [3691], 2 August 1989; & JP-A-1 100 866 (TOA NENRYO KOGYO K.K.) 19-04-1989	
	----	

SPECIAL SUBJECTS  
RESEARCHED (Int. Class 5)

H 01 M

This research report has been prepared for all patent claims

Researched in  
The Hague

Research completed on  
10.10.90

Examiner  
J.W. D'HONDT

Category of the documents quoted

A : technological background

FIG.1

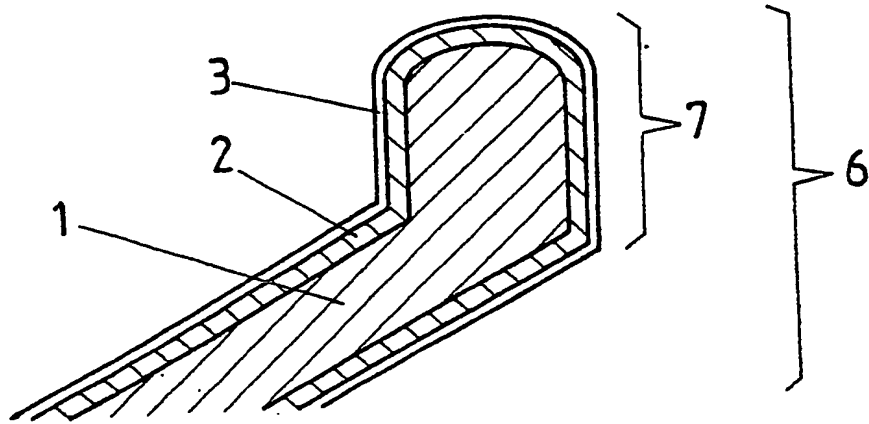


FIG.2

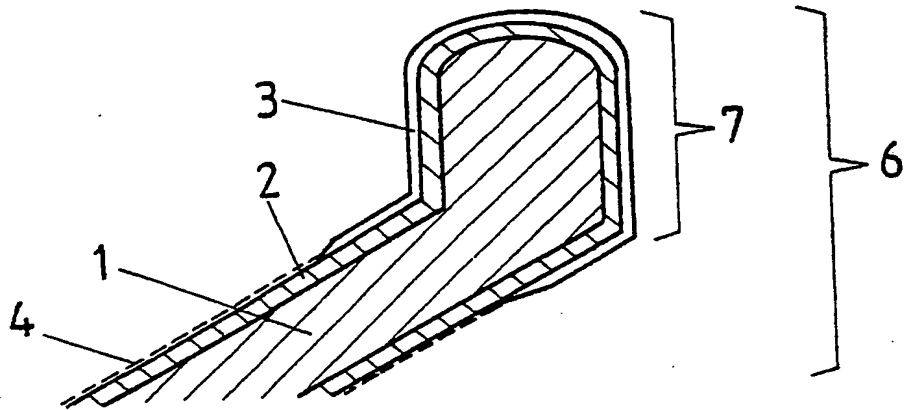


FIG.3

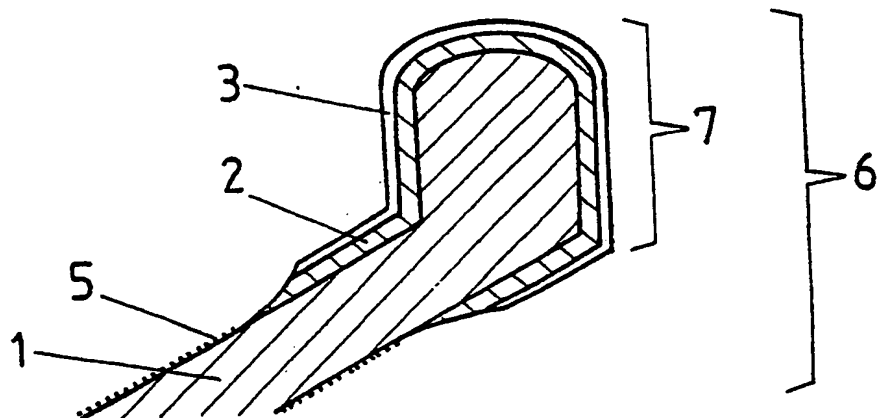


FIG.4

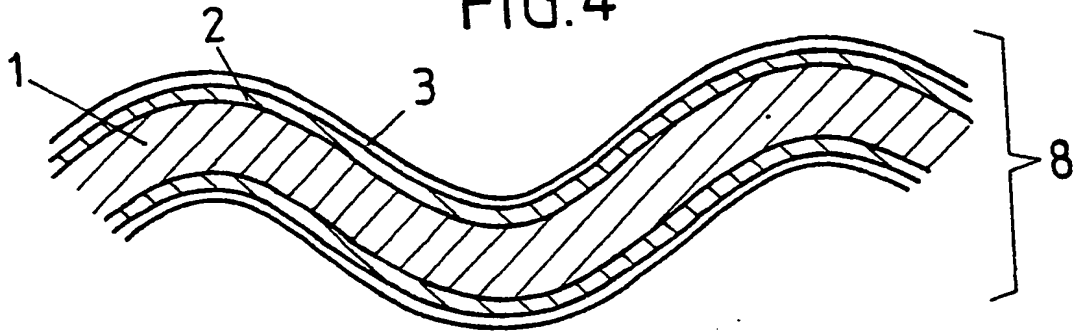


FIG.5

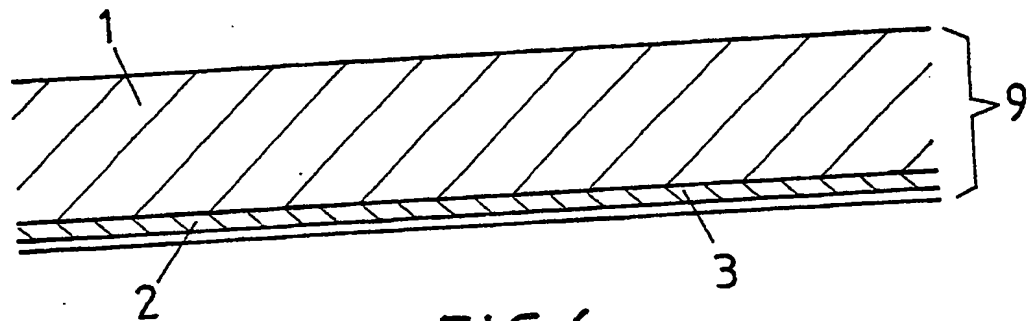


FIG.6

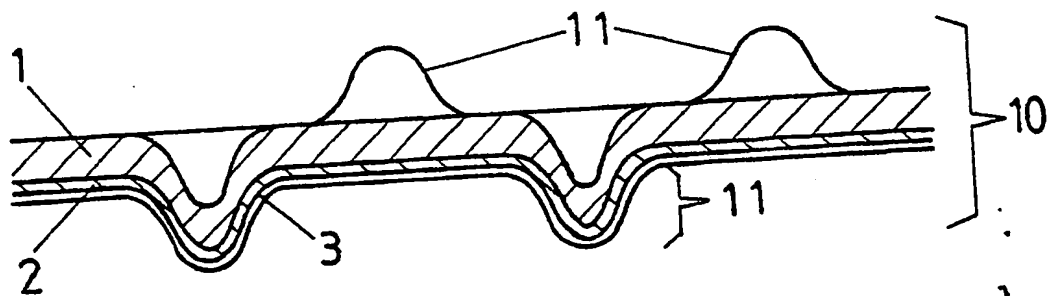


FIG.7

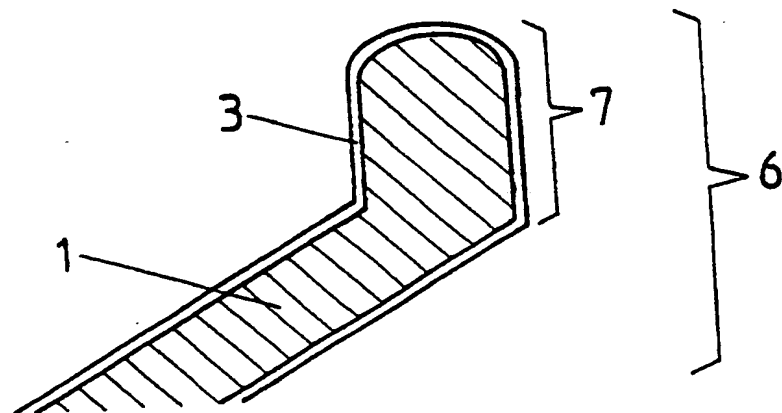




FIG. 8

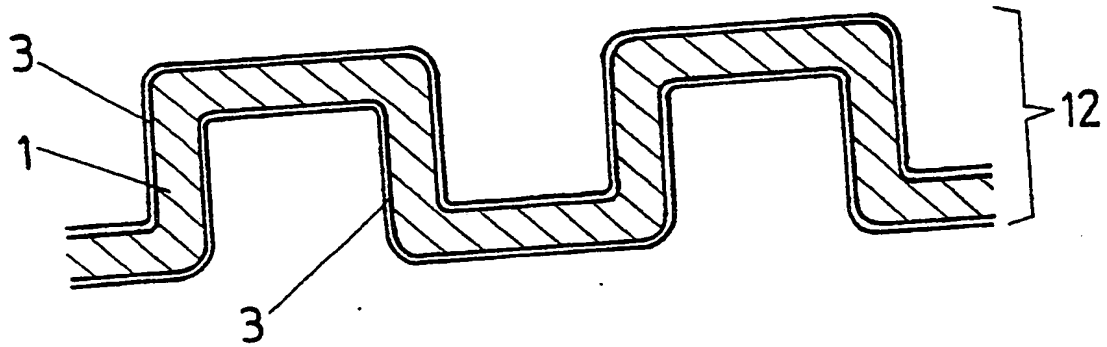


FIG. 9

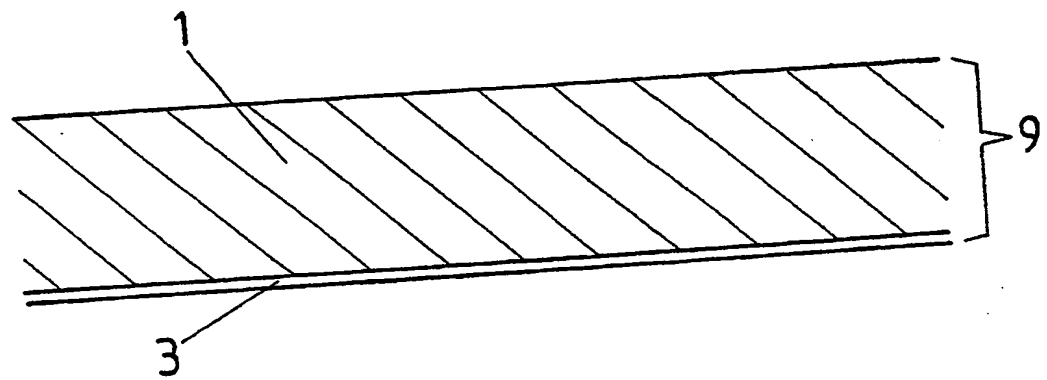
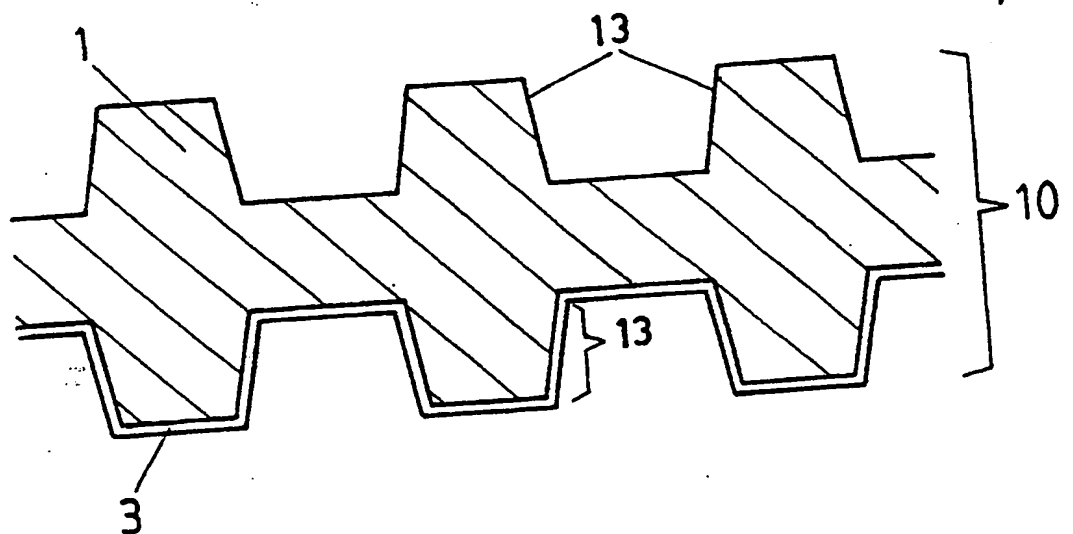


FIG. 10



(19)



Europäisches Patentamt  
European Patent Office  
Office européen des brevets



(11) Veröffentlichungsnummer: **0 410 166 A1**

(12)

# EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(21) Anmeldenummer: 90112733.2

(51) Int. Cl. 5: **H01M 8/02**

(22) Anmeldetag: 04.07.90

(30) Priorität: 24.07.89 CH 2769/89

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
30.01.91 Patentblatt 91/05

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
CH DE FR GB IT LI NL SE

(71) Anmelder: **ASEA BROWN BOVERI AG**  
Haselstrasse  
CH-5401 Baden(CH)

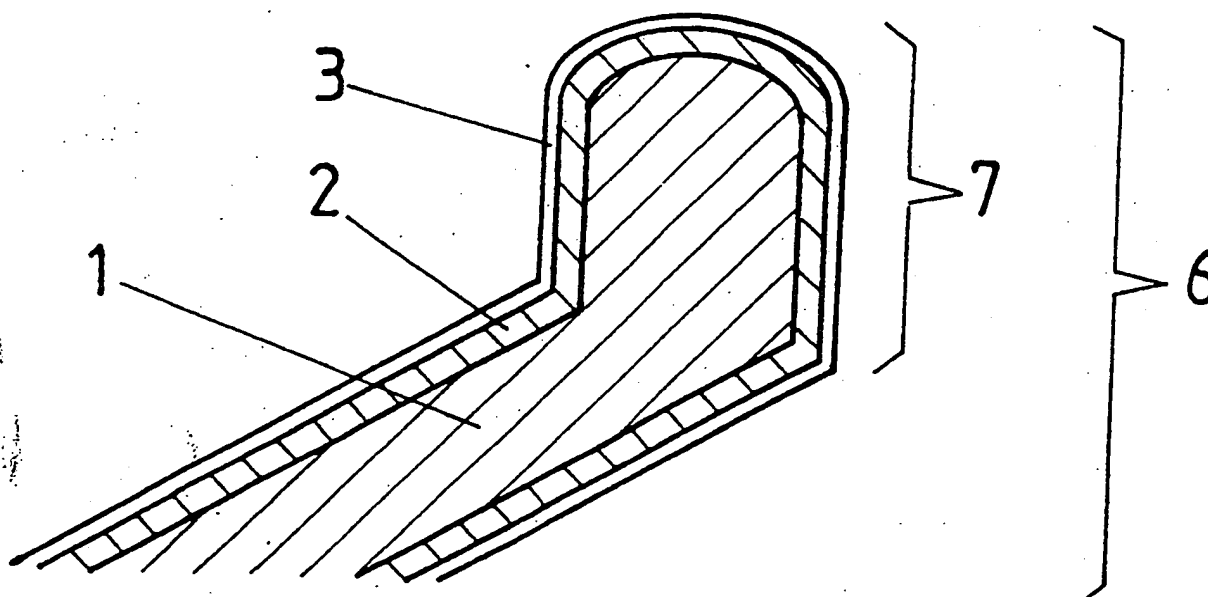
(72) Erfinder: **Nazmy, Mahamed, Dr.**  
Zelglistrasse 30  
CH-5442 Fislisbach(CH)

(54) Bauteil zur Stromführung für Hochtemperatur-Brennstoffzellen.

(57) Bauteil zur Stromführung zwischen benachbarten flachen, ebenen, stapelförmig angeordneten Hochtemperatur-Brennstoffzellen mit keramischem Feststoffelektrolyt aus einem die geometrische Form bestimmenden Kern (1) aus einer warmfesten Nickelbasis- oder Eisenbasislegierung oder aus Cr, Mo, W oder Fe oder aus warmfestem, dotiertem

$\text{Ni}_3\text{Si}$  und einer bei Betriebstemperatur durch  $\text{O}_2$  nicht oxydierbaren metallischen Hülle (3) als Schutzschicht aus Au, Pd oder Pt oder einer Legierung dieser Elemente sowie einer Zwischenschicht (2) aus  $\text{Ni}_3\text{Si}$  als Diffusionssperre zwischen Kern (1) und Hülle (3).

## FIG.1



EP 0 410 166 A1

## BAUTEIL ZUR STROMFÜHRUNG FÜR HOCHTEMPERATUR-BRENNSTOFFZELLEN

### Technisches Gebiet

Hochtemperatur-Brennstoffzellen zur Umwandlung von chemischer Energie in elektrische Energie. Die elektrochemische Energieumwandlung und die hierzu benötigten Vorrichtungen gewinnen dank ihres guten Wirkungsgrades gegenüber anderen Umwandlungsarten an Bedeutung.

Die Erfindung bezieht sich auf die Weiterentwicklung der elektrochemischen Hochtemperatur-Zellen unter Verwendung von keramischen Feststoffelektrolyten als Ionenleiter, wobei die Zellen weitgehend unabhängig vom verwendeten Brennstoff sein sollen und eine raumsparende Anordnung gewähren sollen.

Im engeren Sinne betrifft die Erfindung ein Bauteil zur Stromführung zwischen benachbarten flachen, ebenen, stapelförmig angeordneten Hochtemperatur-Brennstoffzellen mit Feststoffelektrolyt auf der Basis von dotiertem, stabilisiertem Zirkonoxyd, wobei jeweils die Sauerstoffelektrode der einen Brennstoffzelle mit der Brennstoffelektrode der nächstfolgenden Brennstoffzelle elektrisch verbunden und der zwischen den Elektroden liegende Zwischenraum durch eine gasdichte, elektrisch leitende Trennplatte in zwei, die unterschiedlichen gasförmigen Medien Brennstoff und Sauerstoffträger führenden Räume unterteilt ist.

### Stand der Technik

Hochtemperatur-Brennstoffzellen mit keramischem Feststoffelektrolyten sind aus zahlreichen Veröffentlichungen bekannt. Die eigentlichen Elemente für derartige Zellen können die verschiedensten Formen und Abmessungen aufweisen. Um die ohmschen Spannungsverluste klein zu halten, wird allenthalben versucht, die Dicke der Elektrolytschicht möglichst niedrig zu halten. Form und Abmessungen der Elemente richten sich zudem nach der Forderung der Möglichkeit der elektrischen Serieschaltung einer Vielzahl von Zellen, um auf die nötige Klemmenspannung zu kommen und die Ströme vergleichsweise niedrig zu halten. Es gibt Elemente in Form von:

Zylindrischen Röhren (Westinghouse),  
Konischen Röhren, ähnlich "Schachtelhalm" (Dornier)  
Trapezförmigen Wellen (Argonne)  
Kreisförmigen Platten (ZTEK).

Bei der Entwicklung von Brennstoffzellen mit keramischem Feststoffelektrolyt hat man sich bis-

her fast nur mit der Verbesserung und Verbilligung der keramischen Bauteile in Form von röhrenförmigen Brennstoffzellen-Elementen befasst. Über geeignete Anordnungen zur möglichst optimalen Raumausnutzung und der Erzielung hoher Spannungen durch geeignete, für die Serieschaltung der einzelnen Zellen vorteilhafte Konfiguration finden sich praktisch keine Hinweise.

Im Falle einer stapelförmigen Anordnung einer Vielzahl von plattenförmigen ebenen Brennstoffzellen ähnlich dem Filterpresse-Prinzip muss der Strom senkrecht zur Plattenebene von der Sauerstoffelektrode der einen Zelle zur Brennstoffelektrode nächstfolgenden Zelle geleitet werden. Als wesentliche Bauelemente sind für diese Funktion Trennplatten (Bipolarplatten) und elektrische Verbindungsglieder zu den Elektroden (Stromkollektoren) erforderlich.

Die bisher bekannten Bauelemente befriedigen vielfach bezüglich der verwendeten Werkstoffe, der Konstruktion und Fabrikation sowie dem Langzeitverhalten den modernen Anforderungen nicht.

Die bekannten, für Brennstoffzellen verwendeten Grundelemente zeichnen sich meistens durch eine vergleichsweise komplizierte Geometrie aus, die den Bau von kompakten, raumsparenden Anlagen erschwert. Ausserdem ist entsprechend den vorgeschlagenen Formen eine rationelle Fertigung im grosstechnischen Massstab kaum möglich. Insbesondere fehlt eine für eine optimale Serieschaltung der Einzelzellen brauchbare Konfiguration, die sich mit einfachen Fabrikationsmitteln realisieren lässt.

Es besteht daher ein grosses Bedürfnis nach Weiterentwicklung, Vereinfachung und Rationalisierung des Aufbaus und der Herstellung von Grundbauelementen und deren optimale gegenseitige Anordnung basierend auf keramischen Hochtemperatur-Brennstoffzellen.

Zum Stand der Technik werden die nachfolgenden Druckschriften genannt:

- O. Antonsen, W. Baukal und W. Fischer, "Hochtemperatur-Brennstoffbatterie mit keramischem Elektrolyten", Brown Boveri Mitteilungen Januar/Februar 1966, Seiten 21 - 30,
- US-A- 4 692 274
- US-A- 4 395 468
- W.J. Dollard und W.G. Parker, "An overview of the Westinghouse Electric Corporation solid oxide fuel cell program", Extended Abstracts, Fuel Cell Technology and Applications, International Seminar, Den Haag, Niederlande, 26. bis 29. Oktober 1987.
- F.J. Rohr, High-Temperature Fuel Cells, Solid Electrolytes, 1978 by Academic Press, Inc., Seite

431 ff.

- D.C. Fee et al., Monolithic Fuel Cell Development, Argonne National Laboratory, Paper presented at the 1986 Fuel Cell Seminar, Oct. 26 - 29, 1986 Tucson, AZ, U.S. Department of Energy, The University of Chicago.

- Shouichi Ochiai. and Tomoo Suzuki, "Solubility Data in  $Ni_3Si$  with Ternary Additions", BULL. P.M.E. (T.I.T.), No. 52, September 1983, Published by Research Laboratory of Precision Machinery and Electronics, Tokyo Institute of Technology, Nagatsuta, Midori-ku, Yokohama 227, Japan.

- TOMOO SUZUKI, YOSHIHIRO OYA, and SHOUICHI OCHIAI, "THE MECHANICAL BEHAVIOR of Nonstoichiometric Compounds  $Ni_3Si$ ,  $Ni_3Ge$ , and  $Fe_3Ga$ ", METALLURGICAL TRANSACTIONS A, VOLUME 15A. JANUARY 1984 - 173. - A. I. Taub, C. L. Briant, S. C. Huang, K.-M. Chang, and M. R. Jackson, "DUCTILITY IN BORON-DOPED, NICKEL-BASE  $L_{12}$  ALLOYS PROCESSED BY RAPID SOLIDIFICATION", General Electric Corporate Research and Development Schenectady, New York 12301, Scripta METALLURGICA Vol. 20, pp. 129 - 134, 1986.

#### Darstellung der Erfindung

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Bauteil zur Stromführung zwischen benachbarten Ebenen, stapelförmig angeordneten Hochtemperatur-Brennstoffzellen anzugeben, welches einerseits einen guten elektrischen Kontakt sowohl zu den Elektroden der Brennstoffzelle wie zu den Bauteilen unter sich bei Temperaturen bis zu 1000 °C gewährleistet, seinerseits eine hohe metallische elektrische Leitfähigkeit besitzt und sowohl in reduzierender, neutraler wie in oxydierender Atmosphäre ohne nachteilige Veränderungen durch Materialwanderungen wie Diffusions- oder andere Migrationsvorgänge oder Materialverluste wie Abdampfen etc. eingesetzt werden kann und eine hohe Langzeitstabilität aufweist. Das Bauteil soll kostengünstig, reproduzierbar und auswechselbar hergestellt werden können.

Diese Aufgabe wird dadurch gelöst, dass das eingangs erwähnte Bauteil aus einem die geometrische Form bestimmenden Kern aus einem warmfesten Werkstoff ausgewählt aus einer Eisenbasis- oder Nickelbasislegierung, oder Fe, Cr, Mo, W oder einer Legierung dieser Elemente, die höchstens 0,2 Gew.-% Al, Ti, Nb, Co und höchstens 0,5 Gew.-% Si enthält, oder der intermetallischen Verbindung Nickelsilizid  $Ni_3Si$  und einer in Sauerstoffatmosphäre bei Betriebstemperatur nicht oxydierenden metallischen Hülle als Schutzschicht ausgewählt aus den Elementen Au, Pd, Pt oder einer

beliebigen Legierung mindestens zweier dieser Elemente und einer als Diffusionssperre dienenden Zwischenschicht aus  $Ni_3Si$  zwischen Kern und Hülle besteht.

#### Weg zur Ausführung der Erfindung:

Die Erfindung wird anhand der nachfolgenden, durch Figuren näher erläuterten Ausführungsbeispiele beschrieben.

Dabei zeigt:

Fig. 1 einen Längsschnitt durch einen Stromkollektor in Form eines Kontaktfingers mit durchgehender Hülle,

Fig. 2 einen Längsschnitt durch einen Stromkollektor in Form eines Kontaktfingers mit nicht durchgehender Hülle und durchgehender Diffusionssperre,

Fig. 3 einen Längsschnitt durch einen Stromkollektor in Form eines Kontaktfingers mit nicht durchgehender Hülle und nicht durchgehender Diffusionssperre,

Fig. 4 einen Längsschnitt durch einen Stromkollektor in Form eines gewellten Drahtes,

Fig. 5 einen Längsschnitt durch eine Trennplatte,

Fig. 6 einen Längsschnitt durch eine Bipolarplatte,

Fig. 7 einen Längsschnitt durch einen Stromkollektor in Form eines Kontaktfingers, dessen Kern aus dem Werkstoff der Diffusionssperre besteht,

Fig. 8 einen Längsschnitt durch einen Stromkollektor in Form eines gewellten Bandes, dessen Kern aus dem Werkstoff der Diffusionssperre besteht,

Fig. 9 einen Längsschnitt durch eine Trennplatte, deren Kern aus dem Werkstoff der Diffusionssperre besteht,

Fig. 10 einen Längsschnitt durch eine Bipolarplatte, deren Kern aus dem Werkstoff der Diffusionssperre besteht.

In Fig. 1 ist ein Längsschnitt durch einen Stromkollektor in Form eines Kontaktfingers mit durchgehender Hülle dargestellt. 1 stellt allgemein den Kern des Bauteils dar. Er besteht aus Cr, Mo, W, Fe oder einer Al- und Si-freien Nickel- oder Eisenbasislegierung mit oder ohne Oxyddispersion. 2 ist eine Zwischenschicht des Bauteils, die als Diffusionssperre für Edelmetalle wirkt. Sie besteht aus der intermetallischen Verbindung  $Ni_3Si$ , die gegebenenfalls weitere Zusätze zur Erhöhung der Warmfestigkeit und/oder Duktilität enthält. 3 stellt die als Schutzschicht wirkende Hülle des Bauteils dar. Sie besteht im allgemeinen aus einem Edelmetall ausgewählt aus Au oder einem Platinmetall oder einer Legierung des genannten Elements.

Vorzugsweise besteht die Hülle 3 aus Au, Pd oder einer Au/Pd-Legierung. Im vorliegenden Fall bezeichnet 6 ein als Stromkollektor in Form eines Kontaktfingers ausgebildetes Bauteil. 7 ist der Kopf des Kontaktfingers.

Fig. 2 zeigt einen Längsschnitt durch einen Stromkollektor in Form eines Kontaktfingers mit nicht durchgehender Hülle und durchgehender Diffusionssperre. 1 ist der aus einem warmfesten metallischen Werkstoff gemäss Fig. 1 bestehende Kern des Bauteils. Die Zwischenschicht 2 ist durchgehend, während die Hülle 3 als Schutzschicht lediglich in Form einer Kappe auf dem Kopf 7 des Bauteils sitzt. Auf dem nicht durch die Hülle 3 geschützten Teil des Kontaktfingers 6 befindet sich die sich spätestens im Betrieb bei erhöhter Temperatur aus Elementen der Zwischenschicht 2 bildende Schutzoxidschicht 4. Letztere besteht im vorliegenden Fall vornehmlich aus  $\text{SiO}_2$ .

Fig. 3 bezieht sich auf einen Längsschnitt durch einen Stromkollektor in Form eines Kontaktfingers mit nicht durchgehender Hülle und nicht durchgehender Diffusionssperre. 1 entspricht dem Kern gemäss Fig. 1. Sowohl die Zwischenschicht (Diffusionssperre) 2 als auch die Hülle (Schutzschicht) 3 bedeckt nur den Kopf 7 des Kontaktfingers 6. Auf dem nicht durch die Hülle 3 noch durch die Zwischenschicht 2 geschützten Teil des Kontaktfingers 6 befindet sich die aus dem Werkstoff des Kerns 1 gebildete Schutzoxidschicht 5. Diese besteht zum Beispiel überwiegend aus  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ .

In Fig. 4 ist ein Längsschnitt durch einen Stromkollektor in Form eines gewellten Draht dargestellt. Der Stromkollektor 8 besteht aus einem elastischen, in Form sinusähnlicher Wellen vorliegenden Draht. 1 ist der Kern des Bauteils, der gemäss Fig. 1 aus einem metallischen Hochtemperaturwerkstoff besteht. 2 ist die Zwischenschicht aus  $\text{Ni}_3\text{Si}$ , 3 die Hülle aus Edelmetall.

In Fig. 5 ist ein Längsschnitt durch eine Trennplatte wiedergegeben. Der Kern des Bauteils ist auf einer Seite mit der Zwischenschicht (Diffusionssperre) 2 und der als Schutzschicht wirkenden Hülle 3 versehen. Die andere Seite der Trennplatte 9 ist in vorliegendem Fall unbeschichtet. Derartige Trennplatten 9 werden als Separatoren zwischen Stromkollektoren ungleichnamiger Polarität zur Trennung und Führung der unterschiedlichen gasförmigen Medien (Sauerstoffträger und gasförmiger Brennstoff) verwendet.

Fig. 6 zeigt einen Längsschnitt durch eine Bipolarplatte. Die Bipolarplatte 10 besteht aus einem Kern 1 in Form eines profilierten Bleches mit Erhebungen 11 in Form von Noppen und den einseitig aufgetragenen Schichten 2 und 3. Die Noppen 11 sind auf beiden Seiten vorhanden und gegeneinander versetzt angeordnet. Die als Diffusionssperre

wirkende Zwischenschicht 2 besteht aus  $\text{Ni}_3\text{Si}$ . Für die nichtoxydierbare Hülle 3 in Form einer Schutzschicht ist ein Edelmetall vorgesehen.

Fig. 7 bezieht sich auf einen Längsschnitt durch einen Stromkollektor in Form eines Kontaktfingers dessen Kern aus dem Werkstoff der Diffusionssperre besteht. Im vorliegenden Fall handelt es sich beim Kern 1 des Bauteils um eine kompakte, die Form bestimmende Masse aus  $\text{Ni}_3\text{Si}$ . Die aus einem Edelmetall bestehende Hülle 3 sitzt direkt auf dem Kern 1 auf. Die übrigen Bezugszeichen entsprechen der Fig. 1.

In Fig. 8 ist ein Längsschnitt durch einen Stromkollektor in Form eines gewellten Bandes wiedergegeben, dessen Kern aus dem Werkstoff der Diffusionssperre besteht. Der Stromkollektor 12 liegt im vorliegenden Fall als gewelltes Band mit rechteckförmigen Wellen vor. Auf dem Kern 1 aus  $\text{Ni}_3\text{Si}$  sitzt direkt die als Schutzschicht wirkende Hülle 3 aus einem Edelmetall beidseitig auf.

Fig. 9 zeigt einen Längsschnitt durch eine Trennplatte, dessen Kern aus dem Werkstoff der Diffusionssperre besteht. Die ebene Trennplatte 9 ist grundsätzlich ähnlich wie Fig. 5 aufgebaut. Der Kern 1 besteht jedoch aus kompaktem  $\text{Ni}_3\text{Si}$ , auf den die aus einem Edelmetall bestehende Hülle 3 direkt einseitig aufgebracht ist.

Fig. 10 bezieht sich auf einen Längsschnitt durch eine Bipolarplatte, deren Kern aus dem Werkstoff der Diffusionssperre besteht. Die Bipolarplatte 10 weist auf beiden Seiten Erhebungen 13 in Form von Warzen oder Leisten zwecks Kontakt zu den Elektroden und Stromführung auf. Der Kern 1 des Bauteils besteht aus kompaktem  $\text{Ni}_3\text{Si}$ . Darauf ist die Hülle 3 aus Edelmetall direkt einseitig aufgebracht.

#### Ausführungsbeispiel 1;

Siehe Fig. 1!

Das Bauteil lag in Form eines aus einem Blechkörper gefertigten Stromkollektors mit zahlreichen Kontaktfingern 6 vor. Das zu diesem Zweck verwendete Blech hatte eine Dicke von 0,6 mm und bestand aus einer Nickelbasis-Superlegierung mit dem Handelsnamen Inconel 600 mit der nachfolgenden Zusammensetzung:

Cr = 15,5 Gew.-%  
Fe = 8,0 Gew.-%  
Mn = 0,5 Gew.-%  
Si = 0,2 Gew.-%  
C = 0,08 Gew.-%  
Ni = Rest

Auf den gestanzten und in die Form von Kontaktfingern 6 gepressten Blechkörper wurde allseitig eine 10  $\mu\text{m}$  dicke Zwischenschicht 2 (Diffusionssperre) aus der intermetallischen Verbin-

dung  $\text{Ni}_3\text{Si}$  durch Kathodenzerstäubung aufgebracht. Auf die Zwischenschicht 2 wurde die Hülle 3 (Schutzschicht) in Form eines galvanischen Überzuges von Gold in einer durchschnittlichen Dicke von 25  $\mu\text{m}$  elektrochemisch abgeschieden. Der Prozess wurde so geführt, dass die maximale Dicke der Hülle 3 im Bereich des Kopfes 7 des Kontaktfingers 6 ca. 40  $\mu\text{m}$  betrug.

#### Ausführungsbeispiel 2:

Siehe Fig. 2!

Aus einem Blechkörper wurde ähnlich Beispiel 1 ein Bauteil in Form eines aus einer Vielzahl von Kontaktfingern 6 bestehenden Stromkollektors gefertigt. Das Blech hatte eine Dicke von 0,4 mm und bestand aus einer Eisenbasislegierung mit der Werkstoffnummer 1.4845 und der Bezeichnung X12CrNi25 21 gemäß Deutscher Norm DIN mit der nachfolgenden Zusammensetzung:

Cr = 25 Gew.-%

Ni = 20 Gew.-%

Si = 0,45 Gew.-%

Mn = 0,7 Gew.-%

C = 0,1 Gew.-%

Fe = Rest

Auf den gemäß Beispiel 1 geformten Blechkörper wurde allseitig eine 10  $\mu\text{m}$  dicke Zwischenschicht 2 von mit 0,1 % B dotiertem  $\text{Ni}_3\text{Si}$  durch Kathodenzerstäubung aufgebracht. Auf die Zwischenschicht 2 wurde nur im Bereich des Kopfes 7 des Kontaktfingers 6 abwechselungsweise eine Anzahl von ca. 3  $\mu\text{m}$  dicken Palladiumschichten und ca. 7  $\mu\text{m}$  dicken Goldschichten derart galvanisch aufgebracht, dass im Mittel die ca. 30  $\mu\text{m}$  dicke Hülle 3 eine Zusammensetzung von 80 Gew.-% Au/20 Gew.-% Pd aufwies. Nach dem üblichen Reinigen und Trocknen wurde der Stromkollektor während 1/2 h bei 900 °C im Vakuum gegläut. Durch Diffusion wurde ein Mischkristall der vorgenannten Zusammensetzung mit einem Soliduspunkt von ca. 1340 °C gebildet, also ein Wert, der nahezu 300 °C höher als der Schmelzpunkt des reinen Goldes lag. Durch diese Massnahme konnte die Festigkeit und Härte bei der Betriebstemperatur von 900 °C gegenüber den Werten des reinen Goldes wesentlich gesteigert und der Dampfdruck erniedrigt werden. Im Betrieb wurde auf den nicht mit einer Hülle 3 geschützten Stellen des Kontaktfingers 6 eine im Wesentlichen aus  $\text{SiO}_2$  bestehende Schutzoxidschicht 4, aus dem Werkstoff der Zwischenschicht 2 stammend, gebildet.

#### Ausführungsbeispiel 3:

Siehe Fig. 3!

Aus einem gewalzten Band wurde ähnlich Beispiel 1, jedoch durch Warmpressen ein Bauteil in Form eines aus 4 parallel angeordneten Kontaktfingern 6 bestehenden Stromkollektors gefertigt. Das Band hatte eine Dicke von 0,5 mm und bestand aus einer oxyddispersionsgehärteten Ni/Cr-Legierung mit der Handelsbezeichnung TD NiCr mit der nachfolgenden Zusammensetzung:

Cr = 20 Gew.-%

10 ThO<sub>2</sub> = 2,0 Gew.-%

Ni = Rest

Auf das Bauteil wurde lediglich auf den Kopf 7 des Kontaktfingers 6 eine 5  $\mu\text{m}$  dicke Zwischenschicht 2 (Diffusionssperre) aus der intermetallischen Verbindung  $\text{Ni}_3\text{Si}$  durch Kathodenzerstäubung aufgebracht. Auf die Zwischenschicht 2 wurden im Bereich des Kopfes 7 des Kontaktfingers 6 abwechselungsweise je 4 Palladiumschichten und Goldschichten von je ca. 5  $\mu\text{m}$  Dicke derart galvanisch aufgebracht, dass im Mittel die ca. 40  $\mu\text{m}$  dicke Hülle 3 eine Zusammensetzung von 60 Gew.-% Au/40 Gew.-% Pd aufwies. Danach wurde das Werkstück während 1/4 h bei 1000 °C in Argonatmosphäre gegläut. Der durch Diffusion gebildete Mischkristall der vorgenannten Zusammensetzung wies eine Solidustemperatur von ca. 1440 °C auf. Diese Legierung zeichnete sich besonders durch eine gegenüber reinem Gold und reinem Palladium wesentlich erhöhte Festigkeit und Härte aus. Bei Raumtemperatur wurde für den weichgeglühten Zustand eine Zugfestigkeit von 350 MPa und eine Vickershärte von 160 VH gemessen. Im Betrieb bildete sich auf den nicht durch die Hülle 3 und nicht durch die Zwischenschicht 2 abgedeckten Stellen des Kontaktfingers 6 eine Schutzoxidschicht 5, die aus dem Werkstoff des Kerns 1 stammte und im wesentlichen aus  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  bestand.

#### Ausführungsbeispiel 4:

Siehe Fig. 4

Das Bauteil lag in Form eines Stromkollektors 8, bestehend aus einem gewellten Draht vor. Der Draht hatte eine Dicke von 0,35 mm und bestand aus oxyddispersionsgehärtetem Molybdän der nachfolgenden Zusammensetzung:

La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> = 2 Gew.-%

Mo = Rest

Auf den gewellten Draht 8 wurde allseitig eine 3  $\mu\text{m}$  dicke Zwischenschicht 2 aus mit 0,2 % B dotiertem  $\text{Ni}_3\text{Si}$  durch Kathodenzerstäubung aufgebracht. Auf die Zwischenschicht 2 wurde die Hülle 3 (Schutzschicht) in Form eines galvanischen Überzuges von Palladium in einer durchschnittlichen Dicke von 20  $\mu\text{m}$  elektrochemisch abgeschieden. Molybdän hat auch bei 1000 °C ausgezeichnete Warmfestigkeit und lässt in seinen Federeigen-

schaften kaum nach. Durch die Oxyddispersion wird durch Gleitebenenblockierung die Warmfestigkeit weiter erhöht.

#### Ausführungsbeispiel 5:

Siehe Fig. 4!

Der in Form eines gewellten Drahtes vorliegende Stromkollektor 8 hatte einen Durchmesser von 0,3 mm und bestand aus oxyddispersionsgehärtetem Wolfram mit folgender Zusammensetzung:

ThO<sub>2</sub> = 2 Gew.-%

W = Rest

Es wurde analog Beispiel 4 verfahren. Der gewellte Draht 8 wurde mit einer 5 µm dicken Zwischenschicht 2 aus B-dotiertem Ni<sub>3</sub>Si versehen, welche ihrerseits mit einer Hülle 3 aus galvanisch abgeschiedenem Platin in einer Dicke von 30 µm überzogen wurde. Platin eignet sich dank seiner vergleichsweise hohen Schmelztemperatur und seines gegenüber Gold bei 1000 °C um 6 Zehnerpotenzen niedrigeren Dampfdruckes sehr gut für Langzeit-Dauerbetrieb bei Temperaturen oberhalb ca. 600 °C.

#### Ausführungsbeispiel 6:

Siehe Fig. 5!

Das Bauteil lag in Form einer aus einem Blech gefertigten Trennplatte 9 vor. Das Blech hatte eine Dicke von 0,8 mm und bestand aus einer Nickelbasis-Superlegierung mit dem Handelsnamen Inconel 690 mit der nachfolgenden Zusammensetzung:

Cr = 30 Gew.-%

Fe = 9,5 Gew.-%

C = 0,03 Gew.-%

Ni = Rest

Der Kern 1 des Bauteils wurde einseitig mit einer Zwischenschicht 2 (Diffusionssperre) von 100 µm Dicke aus Ni<sub>3</sub>Si unter Anwendung des Vakuum-Plasmaspritzverfahrens versehen. Auf diese Zwischenschicht 2 wurde eine Hülle 3 in Form eines 80 µm dicken Goldbleches unter reduzierender Atmosphäre warm aufgewalzt. Auf diese Weise wurden allfällig vorhandene, vom Plasmaspritzen herrührende Poren vollständig geschlossen.

#### Ausführungsbeispiel 7:

Siehe Fig. 6!

Das Bauteil bestand aus einer Bipolarplatte 10 mit beidseitigen Erhebungen 11 in Form von Noppen. Als Werkstoff des Kerns 1 wurde eine Eisen/Nickel-Legierung mit der Handelsbezeichnung

Incoloy 802 verwendet. Der in Form einer Knetlegierung vorliegende Werkstoff hatte die nachfolgende Zusammensetzung:

Cr = 21,4 Gew.-%

5 Fe = 45 Gew.-%

Ni = 32 Gew.-%

Mn = 0,8 Gew.-%

Si = 0,4 Gew.-%

C = 0,4 Gew.-%

10 Ein aus diesem Werkstoff bestehendes weichgeglühtes Blech von 0,7 mm Dicke wurde zur Herstellung der Noppen 11 warmgepresst. Dann wurde eine Zwischenschicht 2 einseitig wie folgt aufgebracht. Der Werkstoff des Kerns 1 wurde zunächst einseitig mit einer durchschnittlich 70 µm dicken Nickelschicht nach dem elektrochemischen Abscheideverfahren belegt. Auf diese Nickelschicht wurde feinkörniges Siliziumpulver (Korngrösse maximal 50 µm) im richtigen stöchiometrischen Verhältnis zur Erzeugung der intermetallischen Verbindung Ni<sub>3</sub>Si aufgegeben und das Ganze während 1/2 h bei 1100 °C einer Glühung in Vakuum unterworfen. Dabei diffundierte das Silizium in die Nickelschicht ein und verband sich mit dieser zu Ni<sub>3</sub>Si (Zwischenschicht 2). Auf die gebildete Zwischenschicht 2 von durchschnittlich ca. 100 µm Dicke wurde einseitig eine Hülle 3 aus Palladium in einer Dicke von 40 µm galvanisch aufgetragen.

#### Ausführungsbeispiel 8:

Siehe Fig. 6!

35 Ähnlich Beispiel 7 bestand das Bauteil aus einer Bipolarplatte 10 mit Erhebungen 11. Als Werkstoff für den Kern 1 wurde eine warmfeste Cr/Fe/Mo-Gusslegierung mit der nachfolgenden Zusammensetzung verwendet:

Cr = 60 Gew.-%

40 Fe = 15 Gew.-%

Mo = 25 Gew.-%

45 Die Form der Bipolarplatte 10 wurde nach dem Präzisionsgussverfahren hergestellt. Die Dicke der Platte betrug durchschnittlich 1 mm. Die Zwischenschicht 2 aus Ni<sub>3</sub>Si wurde in einer Dicke von 200 µm nach dem Vakuum-Plasmaspritzverfahren aufgebracht. Die Hülle 3 bestand aus einer Legierung der Zusammensetzung 60 Gew.-% Pd/40 Gew.-% Pt und hatte eine Dicke von ca. 30 µm. Sie wurde nach einem elektrochemischen Verfahren aufgetragen.

#### Ausführungsbeispiel 9:

55 Siehe Fig. 7:

Das Bauteil lag in Form eines Stromkollektors mit 6 parallelen Kontaktfingern 6 vor. Es wurde aus

einem Blechkörper der mit Bor und Chrom dotierten intermetallischen Verbindung  $\text{Ni}_3\text{Si}$  durch Warmpressen hergestellt.

Nach einer Vorbehandlung im Blankglühen wurde der ganze Kontaktfinger 6 galvanisch mit einer 50  $\mu\text{m}$  dicken Goldschicht (3) überzogen.

#### Ausführungsbeispiel 10:

Siehe Fig. 8!

Das Bauteil lag als Stromkollektor 12 in Form eines gewellten Bandes vor. Der Kern 1 des Bandes bestand aus der mit 0,3 % Bor dotierten, durch sehr schnelle Abkühlung nach dem "meltspinning"-Verfahren vergleichsweise duktil erstarrten intermetallischen Verbindung  $\text{Ni}_3\text{Si}$ . Das Band hatte eine Dicke von 0,3 mm und wurde in einer Vorrichtung durch Warmpressen zu einer rechteckigen Welle verformt.

Nach einer Glühung in reduzierender Atmosphäre wurde das Band 12 galvanisch mit einer 30  $\mu\text{m}$  dicken Palladiumschicht (3) überzogen.

#### Ausführungsbeispiel 11:

Siehe Fig. 9!

Als Bauteil wurde eine Trennplatte 9 hergestellt. Der Kern 1 bestand aus einem gewalzten Blech aus der mit 0,5 % Bor dotierten intermetallischen Verbindung  $\text{Ni}_3\text{Si}$  von 0,7 mm Dicke. Das ebene Blech wurde nach einer Vorbehandlung (Glühung in reduzierender Atmosphäre) einseitig mit einer Hülle 3 von 50  $\mu\text{m}$  Dicke aus Platin versehen. Das Aufbringen der Schutzschicht aus Platin erfolgte nach dem elektrochemischen Verfahren.

#### Ausführungsbeispiel 12:

Siehe Fig. 10!

Das Bauteil bestand aus einer Bipolarplatte 10 mit Erhebungen 13 in Form von Warzen. Als Werkstoff des Kerns 1 wurde  $\text{Ni}_3\text{Si}$  verwendet. Die im ebenen Teil ca. 1,2 mm dicke, mit ca. 1,4 mm hohen Erhebungen 13 versehene Bipolarplatte 10 wurde durch Präzisionsguss hergestellt.

Eine Seite der Bipolarplatte 10 wurde mit einer Hülle 3 als Schutzschicht bestehend aus einer Legierung 70 Gew.-% Au/30 Gew.-% Pd von 40  $\mu\text{m}$  Dicke versehen. Dabei wurden abwechselungsweise Palladium- und Goldschichten von max. 5  $\mu\text{m}$  Dicke im richtigen stöchiometrischen Verhältnis galvanisch aufgetragen und das Ganze anschliessend bei 950 °C unter Vakuum während 1/2 h zwecks Diffusionsausgleichs gegläht.

#### Ausführungsbeispiel 13:

Siehe Fig. 7!

Das Bauteil stellte einen Stromkollektor 6 in Form eines Kontaktfingers dar. Der Kern 1 des Bauteils wurde aus einer oxyddispersionsgehärteten intermetallischen Verbindung der Zusammensetzung  $\text{Ni}_3\text{Si}$  gefertigt.

Zunächst wurden stöchiometrische Mengen von Nickel und Silizium im Tiegel unter Vakuum erschmolzen und die Schmelze abgegossen. Aus den erstarrten Stücken wurde durch sukzessive Zerkleinerung ein feinkörniges Pulver von höchstens 30  $\mu\text{m}$  Partikeldurchmesser hergestellt und mit 2 Gew.-% Thoriumoxyd  $\text{ThO}_2$  gemischt. Die Mischung wurde im Attritor unter Toluol während 20 h mechanisch legiert. Das Legierungspulver wurde in eine entsprechende Form abgefüllt und bei 1000 °C durch Warmpressen bis auf mindestens 98 % der theoretischen Dichte verdichtet.

Nach dem Blankglühen in reduzierender Atmosphäre wurde der Kontaktfinger 6 gebeizt und allseitig galvanisch mit einer 40  $\mu\text{m}$  dicken Hülle (3) aus Palladium überzogen.

#### Ausführungsbeispiel 14:

Siehe Fig. 10!

Als Bauteil wurde eine Bipolarplatte 10 mit Erhebungen 13 in Form von Leisten hergestellt. Der Kern 1 des Bauteils wurde aus einer mit 0,5 Gew.-% Bor dotierten oxyddispersionsgehärteten intermetallischen Verbindung der Zusammensetzung  $\text{Ni}_3\text{Si}$  hergestellt.

Dabei wurde analog Beispiel 13 vorgegangen. Das mit Bor dotierte  $\text{Ni}_3\text{Si}$ -Pulver von maximal 25  $\mu\text{m}$  Partikeldurchmesser wurde mit 1,5 Gew.-% Yttriumoxyd  $\text{Y}_2\text{O}_3$  gemischt und während 24 h unter Toluol im Attritor mechanisch legiert. Die Bipolarplatte 10 wurde durch Heisspressen des Legierungspulvers bei einer Temperatur von 950 °C hergestellt. Dabei wurde eine Dichte von 99 % des theoretischen Wertes erreicht. Nach der üblichen Reinigungsbehandlung wurde die Bipolarplatte 10 einseitig nach dem elektrochemischen Verfahren mit einer Hülle 13 aus Platin von 30  $\mu\text{m}$  Dicke überzogen.

#### Ausführungsbeispiel 15:

Siehe Fig. 7!

Als Bauteil wurde ein Stromkollektor 6 in Form eines Kontaktfingers mit einem verdickten Kopf 7 hergestellt. Der Kern 1 des Bauteils wurde aus zwei Zonen aufgebaut, wobei die im Innern liegende eigentliche Kernzone aus einer mit 2 Gew.-%



Thoriumoxyd  $\text{ThO}_2$  oxyddispersionsgehärteten intermetallischen Verbindung  $\text{Ni}_3\text{Si}$  bestand. Die aussenliegende Randzone hingegen bestand aus nicht-oxyddispersionsgehärtetem  $\text{Ni}_3\text{Si}$ , welches mit 0,5 Gew.-% Bor zwecks Erhöhung der Duktilität dieser Zone dotiert war.

Analog Beispiel 13 wurden stöchiometrische Mengen von Nickel und Silizium geschmolzen und zu einem Pulver von höchstens 30  $\mu\text{m}$  Partikeldurchmesser verarbeitet, mit 2 Gew.-%  $\text{ThO}_2$  gemischt und im Attritor mechanisch legiert. Die Formgebung erfolgte durch heiss-isostatisches Pressen bei 1000 °C während 1/2 h. Der Kontaktfinger 6 wurde nach dem Reinigen mit einer Schicht von mit 0,5 Gew.-% Bor dotiertem  $\text{Ni}_3\text{Si}$  durch Vakuum-Plasmaspritzen überzogen. Die Schichtdicke betrug am Schaft des Kontaktfingers durchschnittlich 250  $\mu\text{m}$ , am Kopf 7 (insbesondere an dessen Scheitel) ca. 400  $\mu\text{m}$ .

Nach der Reinigung wurde der Kopf 7 des Kontaktfingers galvanisch mit einer 50  $\mu\text{m}$  dicken Hülle (3) aus Platin versehen. Dieser Stromkollektor vereinigte hohe Festigkeit der Kernzone mit guter Duktilität der Randzone (Oberflächenschicht).

Die Erfindung ist nicht auf die Ausführungsbeispiele beschränkt.

Das Bauteil zur Stromführung zwischen benachbarten flachen, ebenen, stapelförmig angeordneten Hochtemperatur-Brennstoffzellen mit Feststoffelektrolyt auf der Basis von dotiertem, stabilisiertem Zirkonoxyd, wobei jeweils die Sauerstoffelektrode der einen Brennstoffzelle mit der Brennstoffelektrode der nächstfolgenden Brennstoffzelle elektrisch verbunden und der zwischen den Elektroden liegende Zwischenraum durch eine gasdichte, elektrisch leitende Trennplatte in zwei, die unterschiedlichen gasförmigen Medien Brennstoff und Sauerstoffträger führenden Räume unterteilt ist, besteht aus einem die geometrische Form bestimmenden Kern 1 aus einem warmfesten Werkstoff ausgewählt aus einer Eisenbasis- oder Nickelbasislegierung, oder Fe, Cr, Mo, W oder einer Legierung dieser Elemente, die höchstens 0,2 Gew.-% Al, Ti, Nb, Co und höchstens 0,5 Gew.-% Si enthält, oder der intermetallischen Verbindung Nickelsilizid  $\text{Ni}_3\text{Si}$  und einer in Sauerstoffatmosphäre bei Betriebstemperatur nicht oxydierenden metallischen Hülle 3 als Schutzschicht ausgewählt aus den Elementen Au, Pd, Pt oder einer beliebigen Legierung mindestens zweier dieser Elemente und einer als Diffusionssperre dienenden Zwischenschicht 2 aus  $\text{Ni}_3\text{Si}$  zwischen Kern 1 und Hülle 3. Das Bauteil ist als Stromkollektor in Form eines Kontaktfingers 6 oder Kammes oder Drahtes 8 oder Bandes 12 oder Geflechtes oder als Trennplatte 9 oder als Bipolarplatte 10 ausgebildet.

Der Werkstoff des Kerns 1 besteht in der einen Ausführungsform aus mit weiteren, zum Teil das Si

substituierenden Elementen dotiertem, bei Betriebstemperatur bis 1000 °C eine hohe Kriechfestigkeit und federnde Eigenschaften aufweisenden  $\text{Ni}_3\text{Si}$ , welches allein direkt zur Aufnahme der mechanischen Belastung im Betrieb herangezogen wird.

Der Werkstoff des Kerns 1 besteht in einer anderen Ausführungsform aus einer Nickelbasislegierung mit höchstens 78 Gew.-% Nickel, wobei eine mechanisch nicht belastete Zwischenschicht 2 von höchstens 100  $\mu\text{m}$  Dicke zwischen Kern und Hülle vorgesehen ist.

In einer vorzugsweisen Ausführungsform besteht der Werkstoff des Kerns 1 aus einer oxyddispersionsgehärteten Ni/Cr-Legierung mit höchstens 78 Gew.-% Ni und mindestens 20 Gew.-% Cr und höchstens total 2 Gew.-% von Dispersoiden ausgewählt aus mindestens einem der Oxyde  $\text{ThO}_2$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  oder  $\text{La}_2\text{O}_3$  oder aus einer oxyddispersionsgehärteten W- oder Mo- oder W/Mo-Legierung mit höchstens total 5 Gew.-% von Dispersoiden ausgewählt aus mindestens einem der Oxyde  $\text{ThO}_2$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ ,  $\text{La}_2\text{O}_3$ , einem Oxyd der seltenen Erden, CaO, MgO,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZrO}_2$ , BaO,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Li}_2\text{O}$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{V}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ,  $\text{UO}_2$  oder  $\text{HfO}_2$ .

In einer anderen weiteren Ausführungsform besteht der Werkstoff des Kerns 1 aus einer Chromlegierung mit 60 Gew.-% Cr, 15 - 25 Gew.-% Fe und 15 - 25 Gew.-% Mo.

In einer speziellen Ausführungsform besteht der Werkstoff des Kerns 1 aus mit 0,5 Gew.-% Bor dotiertem, oxyddispersionsgehärtetem  $\text{Ni}_3\text{Si}$  mit 2 Gew.-%  $\text{ThO}_2$  oder  $\text{Y}_2\text{O}_3$  oder  $\text{La}_2\text{O}_3$ . Vorzugsweise ist der Werkstoff des Kerns 1 aus zwei Zonen aufgebaut, wobei die im Innern liegende Kernzone aus mit 2 Gew.-%  $\text{ThO}_2$  oder  $\text{Y}_2\text{O}_3$  oxyddispersionsgehärtetem  $\text{Ni}_3\text{Si}$  und die aussenliegende Randzone aus nicht-oxyddispersionsgehärtetem, mit 0,5 Gew.-% Bor dotiertem  $\text{Ni}_3\text{Si}$  besteht.

## Ansprüche

1. Bauteil zur Stromführung zwischen benachbarten flachen, ebenen, stapelförmig angeordneten Hochtemperatur-Brennstoffzellen mit Feststoffelektrolyt auf der Basis von dotiertem, stabilisiertem Zirkonoxyd, wobei jeweils die Sauerstoffelektrode der einen Brennstoffzelle mit der Brennstoffelektrode der nächstfolgenden Brennstoffzelle elektrisch verbunden und der zwischen den Elektroden liegende Zwischenraum durch eine gasdichte, elektrisch leitende Trennplatte (9) in zwei, die unterschiedlichen gasförmigen Medien Brennstoff und Sauerstoffträger führenden Räume unterteilt ist, dadurch gekennzeichnet, dass es aus einem die geometrische Form bestimmenden Kern (1) aus einem

warmfesten Werkstoff ausgewählt aus einer Eisenbasis- oder Nickelbasislegierung, oder Fe, Cr, Mo, W oder einer Legierung dieser Elemente, die höchstens 0,2 Gew.-% Al, Ti, Nb, Co und höchstens 0,5 Gew.-% Si enthält, oder der intermetallischen Verbindung Nickelsilizid  $\text{Ni}_3\text{Si}$  und einer in Sauerstoffatmosphäre bei Betriebstemperatur nicht oxydierenden metallischen Hülle (3) als Schutzschicht ausgewählt aus den Elementen Au, Pd, Pt oder einer beliebigen Legierung mindestens zweier dieser Elemente und einer als Diffusionssperre dienenden Zwischenschicht (2) aus  $\text{Ni}_3\text{Si}$  zwischen Kern (1) und Hülle (3) besteht.

2. Bauteil nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass es als Stromkollektor in Form eines Kontaktfingers (6) oder Kammes oder Drahtes (8) oder Bandes (12) oder Geflechtes ausgebildet ist.

3. Bauteil nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass es als Trennplatte (9) oder als Bipolarplatte (10) ausgebildet ist.

4. Bauteil nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Werkstoff des Kerns (1) aus mit weiteren, zum Teil das Si substituierenden Elementen dotiertem, bei Betriebstemperaturen bis 1000 °C eine hohe Kriechfestigkeit und federnde Eigenschaften aufweisenden  $\text{Ni}_3\text{Si}$  besteht, welches allein direkt zur Aufnahme der mechanischen Belastung im Betrieb herangezogen wird.

5. Bauteil nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Werkstoff des Kerns (1) aus einer Nickelbasislegierung mit höchstens 78 Gew.-% Nickel besteht und dass eine mechanisch nicht belastete Zwischenschicht (2) von höchstens 100 µm Dicke zwischen Kern und Hülle vorgesehen ist.

6. Bauteil nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass der Werkstoff des Kerns (1) aus einer oxyddispersionsgehärteten Ni/Cr-Legierung mit höchstens 78 Gew.-% Ni und mindestens 20 Gew.-% Cr mit höchstens total 2 Gew.-% von Dispersoiden ausgewählt aus mindestens einem der Oxyde  $\text{ThO}_2$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  oder  $\text{La}_2\text{O}_3$  besteht.

7. Bauteil nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Werkstoff des Kerns (1) aus einer oxyddispersionsgehärteten W- oder Mo- oder W/Mo-Legierung mit höchstens total 5 Gew.-% an Dispersoiden ausgewählt aus mindestens einem der Oxyde  $\text{ThO}_2$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ ,  $\text{La}_2\text{O}_3$ , einem Oxyd der seltenen Erden, CaO, MgO,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZrO}_2$ , BaO,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Li}_2\text{O}$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{V}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ,  $\text{UO}_2$  oder  $\text{HfO}_2$  besteht.

8. Bauteil nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Werkstoff des Kerns (1) aus einer Chromlegierung mit 60 Gew.-% Cr, 15 - 25 Gew.-% Fe und 15 - 25 Gew.-% Mo besteht.

9. Bauteil nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Werkstoff des Kerns (1) aus mit 0,5 Gew.-% Bor dotiertem, oxyddispersionsgehärtetem  $\text{Ni}_3\text{Si}$  mit bis 2 Gew.-%  $\text{ThO}_2$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  oder  $\text{La}_2\text{O}_3$

besteht.

10. Bauteil nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Werkstoff des Kerns (1) aus zwei Zonen aufgebaut ist, wobei die im Innern liegende Kernzone aus mit 2 Gew.-%  $\text{ThO}_2$  oder  $\text{Y}_2\text{O}_3$  oxyddispersionsgehärtetem  $\text{Ni}_3\text{Si}$  und die aussenliegende Randzone aus nicht-oxyddispersionsgehärtetem, mit 0,5 Gew.-% Bor dotiertem  $\text{Ni}_3\text{Si}$  besteht.

FIG.1

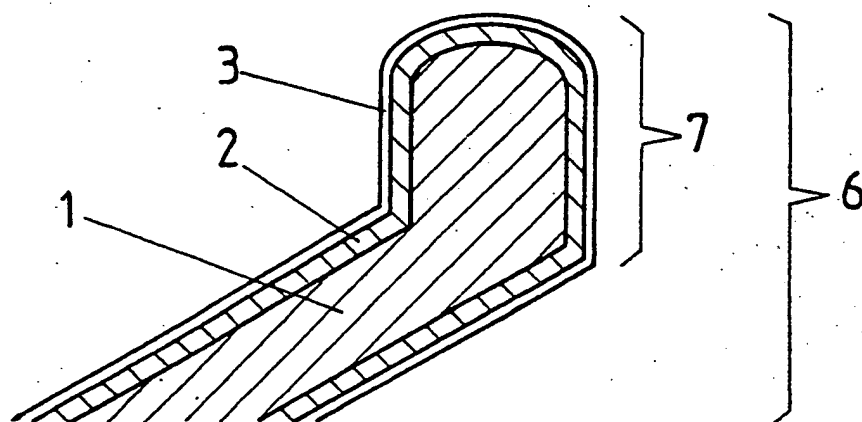


FIG.2

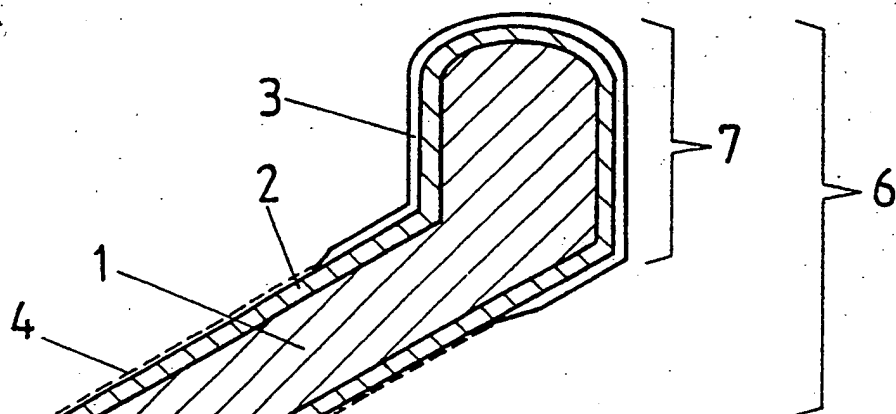


FIG.3

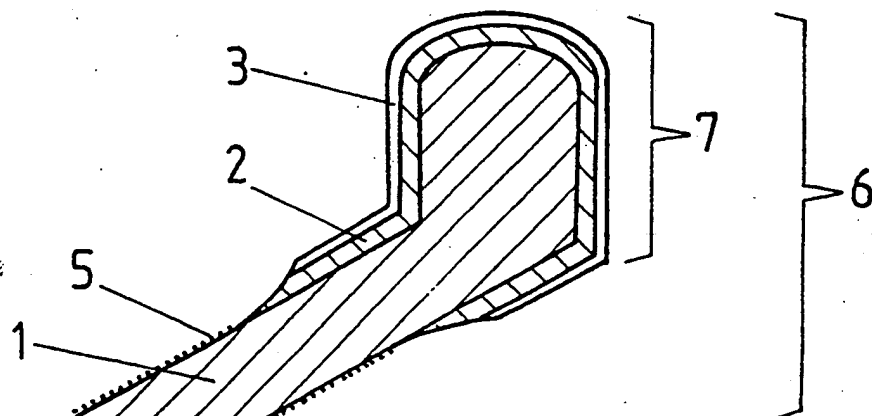


FIG.4

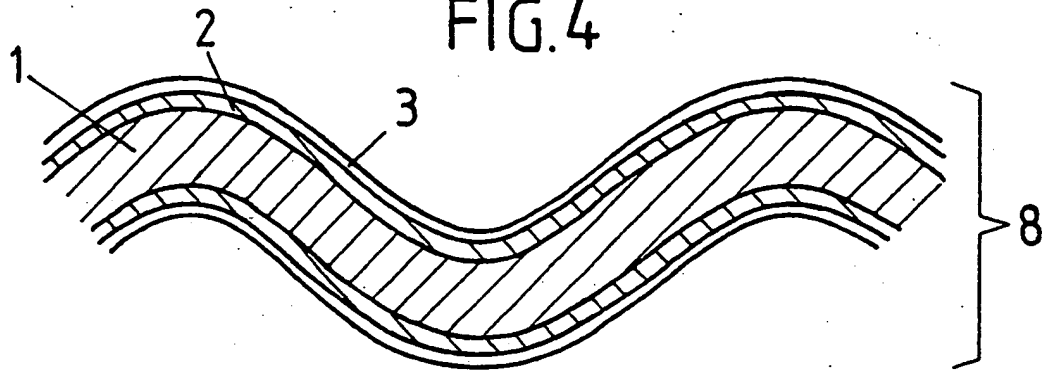


FIG.5

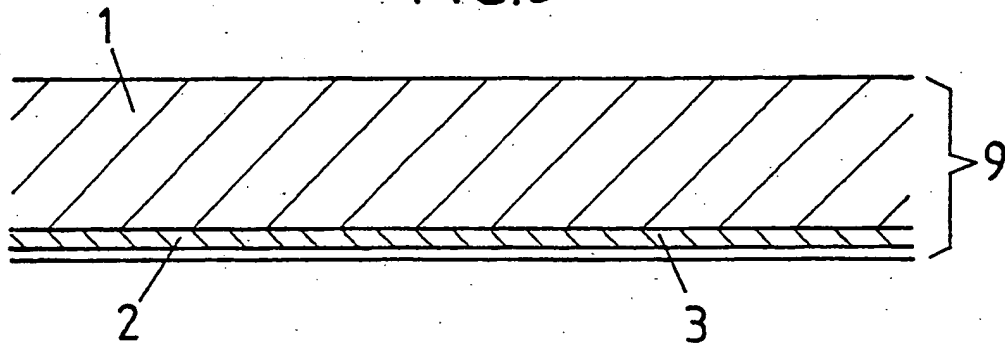


FIG.6

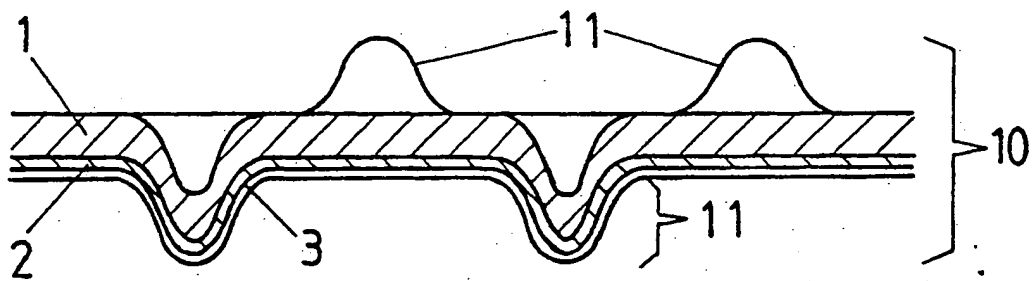


FIG.7

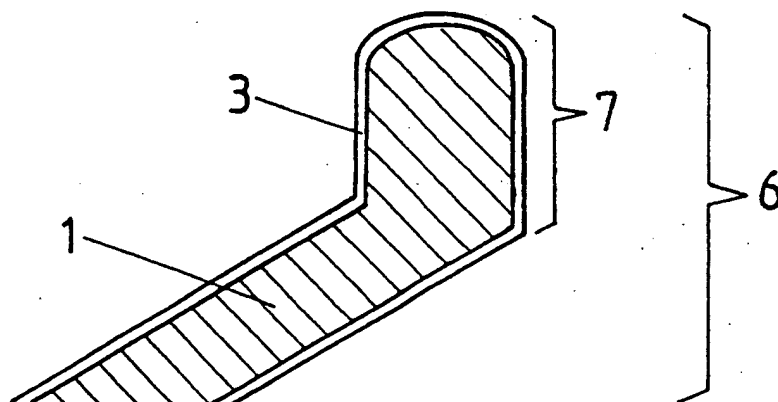


FIG. 8

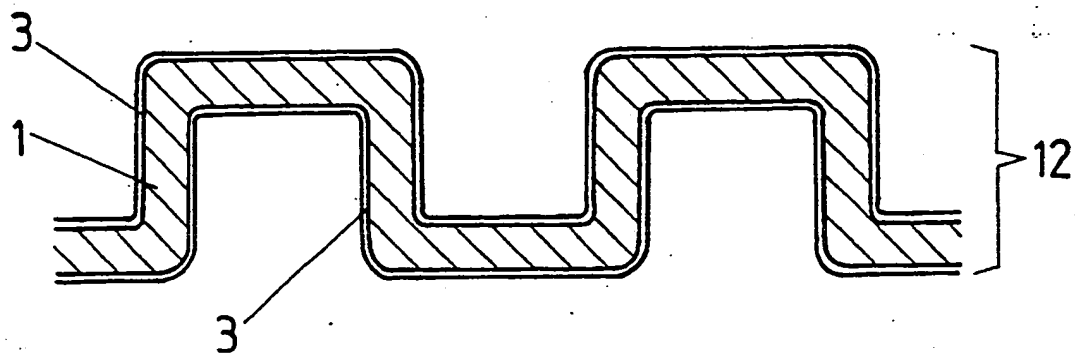


FIG. 9

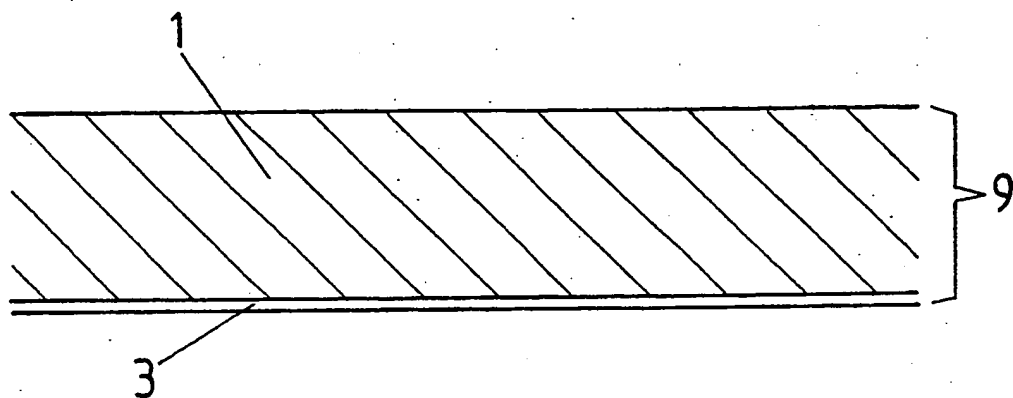
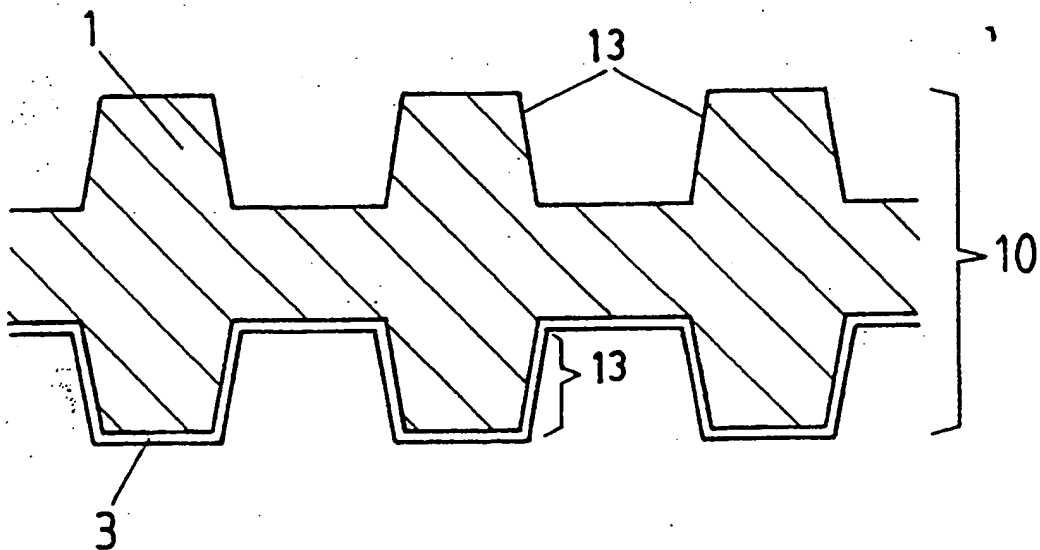


FIG. 10





Europäisches  
Patentamt

# EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

EP 90 11 2733

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. CL.5)
A	WO-A-8 606 762 (M. HSU) ---		H 01 M 8/02
A	US-A-3 516 865 (C.S. TEDMON) ---		
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN, Band 13, Nr. 343 (E-796)[3691], 2. August 1989; & JP-A-1 100 866 (TOA NENRYO KOGYO K.K.) 19-04-1989 -----		
			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. CL.5)
			H 01 M
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt			
Recherchenort DEN HAAG		Abschlußdatum der Recherche 10-10-1990	Prüfer D'HONDT J.W.
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE			
X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : nichtschriftliche Offenbarung P : Zwischenliteratur		T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentedokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus andern Gründen angeführtes Dokument ----- & : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument	